

AUFBAU UND ANWENDUNGEN EINES
20 bar-CO₂-LASERS

Dissertation

der

Fakultät für Physik
Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von

Carlos Schwab
aus Porto Alegre

München, ~~den 24. Oktober 1986~~ 6



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41555422_0032

AUFBAU UND ANWENDUNGEN EINES
20 bar-CO₂-LASERS

Dissertation

der

Fakultät für Physik
Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von

Carlos Schwab
aus Porto Alegre

München, den 24. Oktober 1985

1. Gutachter: Prof. Dr. K.L. Kompa
2. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther
Tag der mündlichen Prüfung: 14. März 1986

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird ein neues Schema für Hochdruck-CO₂-Laser vorgestellt und einige Anwendungen vorgeführt. Im Kapitel 2 wird der Aufbau des Lasers beschrieben. In diesem Kapitel werden die Vorteile einer durch Elektronenstrahl vorionisierten selbständigen Entladung für die Anregung des Lasermediums erörtert. Bogenlose Entladung und Laseremission bis zu 20 bar konnten erzielt werden. Die maximale Energiedichte für einen Laserimpuls war nur aufgrund der Beschädigungsschwelle der optischen Bauteile auf 5 J/cm² begrenzt. Kontinuierliche Abstimmbarkeit ohne Frequenzzieheffekt und breitbandiger Betrieb (bis zu 3,5 cm⁻¹ bei 20 bar) konnten ebenfalls erreicht werden. Im Kapitel 3 wird die Anwendung dieses Lasers in einem Experiment zur Untersuchung des Vielphotonenabsorptionsprozesses in SF₆ beschrieben. Dabei konnte die Existenz spektraler Strukturen in den hohen Absorptionsschritten gezeigt werden. Mit der Zunahme der Emissionsbandbreite des Hochdruck-CO₂-Lasers bis zu 1,5 cm⁻¹ nimmt auch der Vielphotonenabsorptionsquerschnitt dieses Moleküls zu. Der Vergleich mit anderen Experimenten, bei denen eine Zunahme der Absorption für eine abnehmende Impulsdauer gefunden wurde, deutet darauf hin, daß es sich dabei ebenfalls um einen Bandbreiteneffekt handelt. Diese Beobachtungen lassen sich mit der Annahme spektraler Strukturen oberhalb des 10. Absorptionsschritts erklären. Der Effekt der Temperatur, der im Fall breiter Bande verschwindet, verstärkt diese Ansicht. Im letzten beschriebenen Experiment (Kapitel 4) wird die Möglichkeit breitbandiger Absorptionsspektroskopie innerhalb des Laserresonators bewiesen. Mit dieser Methode lassen sich Absorptionen in Gasen bei niedrigen Dichten in einem Spektralbereich von etwa 2,5 cm⁻¹ gleichzeitig mit einem einzelnen Laserschuß messen. Die gefundene Empfindlichkeit bei Messungen in CO₂ und NH₃ wird mit Rechnungen aus einem Differentialgleichungsmodell verglichen.

Inhaltsverzeichnis

Seite

1.	Einleitung	1
2.	Hochdruck-CO ₂ -Laser.	3
2.1	Einleitung.	3
2.2	Druckverbreiterung und Linienüberlappung in Hochdruck-CO ₂ -Lasern	5
2.3	Selbständige und unselbständige Entladungen .	9
2.4	Anregungsmethoden bei Hochdruck-CO ₂ -Lasern. .	11
2.5	Der Elektronenstrahl als Vorionisierung . . .	14
2.6	Experimenteller Aufbau des Lasers	17
2.7	Ergebnisse mit der selbständigen Entladung. .	21
2.8	Frequenzabstimmung mit dem Hochdruck- Kohlendioxidlaser	23
2.9	Schlußfolgerung	27
3.	Vielphotonenanregung von SF ₆ mit breitbandiger CO ₂ -Laserstrahlung	28
3.1	Einleitung.	28
3.2	Strukturen innerhalb des Quasikontinuums. . .	31
3.3	Beschreibung des Experiments.	33
3.4	Auswertungsmethode.	37
3.5	Ergebnisse.	39
3.6	Deutung	41
3.7	Schlußfolgerung	43
4.	Spektroskopie im Resonator mit dem breitbandigen CO ₂ -Laser.	45
4.1	Einleitung.	45
4.2	Experimenteller Aufbau.	48
4.3	Ergebnisse.	51
4.4	Deutung	57
4.5	Modellrechnungen mit kinetischen Gleichungen.	61
4.6	Schlußfolgerung	67
	Literatur	69

1. Einleitung

Molekulargaslaser werden heutzutage im wesentlichen in zwei Zusammenhängen weitgehend erforscht. Einerseits versucht man durch neue Techniken immer größere Leistungen von existierenden Lasern zu bekommen, andererseits sucht man nach neuen Linien, die in Chemie und Spektroskopie nützlich sein können, und dadurch nach einer Erweiterung der Anwendung von Lasern in noch nicht erforschten Bereichen. In diesem Zusammenhang bieten stetig abstimmbare Hochleistungslaser zahlreiche Möglichkeiten. Dabei spielen wegen des immer noch wachsenden Interesses an optischen Pumpen und Infrarotvielphtonenanregung Hochdruck-CO₂-Laser eine wichtige Rolle.

In einem Atmosphärendruck-CO₂-Laser zeigt die Verstärkung einer Emissionslinie eine Breite von ungefähr 0.1 cm^{-1} . Da die Entfernung zwischen benachbarten Linien etwa 1.8 cm^{-1} und 1.2 cm^{-1} im P- bzw. R-Zweig entspricht, sind solche Laser nur teilweise (diskret) abstimmbare. Mit zunehmenden Gasdrücken verbreitern sich die Linien, und bei 20 bar ist eine einzelne Linie etwa 2.6 cm^{-1} breit. Das ist mehr als die Entfernung zwischen zwei benachbarten Linien, so daß die Struktur des Verstärkungsspektrums wegen der Überlappung mehrerer Linien mehr oder weniger verschwindet, und man kann eine glatte, kontinuierliche Durchstimbarkeit sowie die Möglichkeit von Vielfrequenzbetrieb erwarten.

Verschiedene Schemas sind in den letzten Jahren vorgeschlagen und verwendet worden, um Hochdruck-CO₂-Laser anzuregen; darunter waren die UV-vorionisierten und die elektronenstrahlkontrollierten Entladungen bisher am erfolgreichsten. Hier wird eine neue Möglichkeit vorgestellt, die wir demonstriert haben. Dieses Schema, glaube ich, vereinigt die Vorteile der beiden vorher erwähnten Anre-

gungsmethoden. Es handelt sich um eine selbständige, durch Elektronenstrahl vorionisierte Entladung. Ich werde zunächst unsere Laservorrichtung ausführlicher beschreiben und dann diesen Bericht mit zwei experimentellen Anwendungen ergänzen, in denen der beschriebene Laser benutzt worden ist.

In dem ersten dieser Experimente wurde die Vielphotonenabsorption des SF_6 -Moleküls zuerst mit dem Laser schmalbandig ins Maximum der P20-Linie der $10.6 \mu\text{m}$ Bande des CO_2 abgestimmt, und dann breitbandig im selben Bereich gemessen. Die gefundenen Unterschiede wurden durch Annahme spektraler Strukturen in hohen Absorptionsschritten (in dem sogenannten Quasikontinuum also) gedeutet.

Im letzten Experiment wurde die Möglichkeit breitbandiger Absorptionsspektroskopie innerhalb des Laserresonators bewiesen. Mit dieser Methode kann man Absorptionen in Gasen bei niedrigen Dichten in einem Spektralbereich von etwa 2.5 cm^{-1} gleichzeitig mit einem einzelnen Laserschuss messen.

2. Hochdruck-CO₂-Laser

2.1 Einleitung

Die Forschungen mit abstimmbaren Infrarothochleistungslasern sind in den letzten Jahren im Zusammenhang mit der Auslösung chemischer Reaktionen durch Laserstrahlung und mit Molekülspektroskopie sehr wichtig geworden. Am Anfang der siebziger Jahre gab es aber im Infrarotbereich keinen Laser, der die nötigen Eigenschaften (Durchstimmbarkeit, hohe Ausgangsleistung und Wirkungsgrad) in sich vereinigte. Die durchstimmbaren Halbleiterlaser z.B., die in diesem Bereich arbeiten, boten nur niedrige Leistung. Infrarotgaslaser zeigen andererseits höhere Ausgangsleistungen und hohe Wirkungsgrade /1/ und sind deshalb attraktiv für chemische und spektroskopische Anwendungen.

Mit der Entwicklung einer neuen Anregungsmethode für Hochdruckgaslaser im Jahr 1971 /2, 3/ haben schon Basov u.a. /4/ die Möglichkeit erörtert, Rotationsschwingungsübergänge der Lasermoleküle bei so hohem Druck anzuregen, daß sich benachbarte Linien überlappen. Die Wellenzahl ν (in cm^{-1}) eines Rotationsschwingungsüberganges wird in erster Annäherung durch /5/

$$\nu = \nu_0 + B\Delta J (J_u + J_o + 1) \quad (2.1.1)$$

gegeben, wobei ν_0 die zentrale ($\Delta J = 0$) Frequenz und B die Rotationskonstante, beide in Wellenzahlen, darstellt. J_o und J_u sind die Rotationsquantenzahlen des oberen bzw. unteren Zustandes und $\Delta J = J_o - J_u$. In symmetrischen Schwingungszuständen des CO₂-Moleküls, z.B. in den unteren Laserniveaus, existieren nur geradzahlige J, und die Auswahlregeln erlauben nur Übergänge mit $\Delta J = -1$ (P-Zweig) und mit $\Delta J = +1$ (R-Zweig) /5/. Daher ist der Abstand zwischen zwei nebeneinander liegenden Linien $4B$, und es genügt, die

Niveaus um größenordnungsmäßig 2B zu verbreitern, um ein kontinuierliches Spektrum zu bekommen.

Schon ab 20 mbar werden die Linienbreiten der Rotationsschwingungsübergänge des CO_2 hauptsächlich von den Molekülstößen bestimmt, und sie sind ab 50 mbar zum Druck proportional /6/. Diese Linienbreiten sind für verschiedene Gasmischungen, die bei CO_2 -Lasern üblich sind, von mehreren Autoren berechnet /7, 8/ und gemessen /9, 10/ worden. Die allgemeinen Ergebnisse werden durch den Ausdruck /10/

$$\Delta\nu = 0.19 (X_{\text{CO}_2} + 0.73 X_{\text{N}_2} + 0.64 X_{\text{He}}) p \left(\frac{300}{T}\right)^{1/2} \quad (2.1.2)$$

gut dargestellt, wobei $\Delta\nu$ die Linienbreite in cm^{-1} , T die Temperatur, p der gesamte Druck in bar und X der Molanteil des betreffenden Gases sind. Im Fall von reinem CO_2 bei Zimmertemperatur z.B. ist die Verbreiterungskonstante $0.19 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$, während die Rotationskonstante etwa 0.39 cm^{-1} ist /8/.

Der Hochdruckbetrieb eines CO_2 -Lasers zeigt im übrigen noch eine wichtige Konsequenz außer der Durchstimmbarkeit, nämlich, daß ein großer stoßverbreiteter Bereich des Laserüberganges zur Verfügung steht, um kurze Pulse zu erzeugen. Die große Inversionsdichte bei hohem Druck und der hohe Wirkungsgrad des Lasers ermöglichen die Erzeugung kurzer Pulse mit großen Spitzenleistungen. Die wirksame Linienbreite des Laserüberganges ist bei genügend hohen Drücken von der Größenordnung THz. Sie erlaubt also, Pikosekunden-Laserpulse zu erzeugen /11/.

2.2 Druckverbreiterung und Linienüberlappung in Hochdruck-CO₂-Lasern

In einem gewöhnlichen gütegeschalteten CO₂-Laser befinden sich mehr als 10 Übergänge über der Schwelle /7/. Nach einem Experiment von Basov u.a. /12/ verursacht die Zunahme des Druckes im wesentlichen keine qualitative Änderung der Anregungs- und Relaxationsprozesse. Das heißt, die Geschwindigkeiten aller dieser Prozesse nehmen mit dem Druck zu. Konstant bleiben aber ihre Verhältnisse, die schon lange für Normaldruck- und Niederdrucklaser bekannt sind /13, 14, 15/. Man kann also auch bei höheren Drücken damit rechnen, daß viele Linien über der Schwelle bleiben, und daß dieselben Prozesse bei der Laseremission wie bei niedrigeren Drücken berücksichtigt werden müssen. Eigentlich ist das nicht so genau, weil neben Verbreiterungen der Niveaus mit dem Druck auch Linienverschiebungen auftreten /16, 17, 18/ und weil die beobachteten anormalen Absorptionen bei hohen Drücken wegen des Einflusses der heißen Banden und Sequenzbanden /19, 20, 21/ zu leichten Abweichungen der sonst erwarteten Laserspektren führen. Die Linienverschiebungen sind aber bei niedrigen Drücken sehr klein. Bei höheren Drücken gibt es ebenfalls nur kleine Effekte, weil die Linien schon sehr breit sind. Der Beitrag der heißen Banden und Sequenzbanden andererseits besteht darin, daß die Verstärkung noch schneller als sonst erwartet mit dem Druck zunimmt /19/. Bei höheren Drücken als 12 bar sind außerdem kleine Beiträge von 3-Körper-Stößen zu erwarten /22/. Der wichtigste Effekt aller dieser Prozesse ist, daß die Überlappung der Linien mit dem Druck noch verstärkt wird.

Das erwähnte Experiment von Basov u.a. /12/ zeigt, daß für unverändertes U/p (U = deponierte Energie, p = Druck) die Verstärkung bis zu 3 bar konstant bleibt und danach mit dem Druck wächst. Für p kleiner als 3 bar wird

die Zunahme der Inversionsdichte durch die Zunahme der Linienbreite ausgeglichen. Ab 3 bar Druck aber beginnen die Ausläufer der benachbarten Linien beträchtlich beizutragen, und so wächst allmählich die Verstärkung für alle Frequenzen. Über 10 bar wird die Verstärkung zwischen den Linien schon so groß, daß die ursprüngliche Linienstruktur verschwindet und die R- und P-Zweige allmählich zwei nur noch schwach modulierte kontinuierliche Kurven werden.

Zur qualitativen Beschreibung dieses Vorganges vernachlässigen wir die Linienverschiebung durch den Druck sowie den Einfluß der heißen Banden und Sequenzbanden. Der Absorptionskoeffizient einer molekularen Spektrallinie ist durch /5/

$$\alpha(\nu) = N \cdot S \cdot g(\nu) \quad (2.2.1)$$

gegeben, wobei N die Besetzungsdichte des unteren Zustandes, S die Linienstärke des Überganges und $g(\nu)$ die normierte Linienformfunktion ist. Wenn der Spektralübergang hauptsächlich durch Stöße verbreitert ist, ist die Linienform beinahe Lorentz-förmig /23, 24/ und also für optische Frequenzen durch

$$g(\nu) = \frac{\Delta\nu/2\pi}{(\nu-\nu_0)^2 + (\Delta\nu/2)^2} \quad (2.2.2)$$

gegeben, wobei ν_0 die zentrale Frequenz und $\Delta\nu$ die Linienbreite sind. Die Linienstärken der P- und R-Laserübergänge des CO_2 -Moleküls sind andererseits zum Faktor J bzw. $(J+1)$ proportional, wobei J die Rotationsquantenzahl des unteren Zustandes ist /5, 25/.

Der Ausdruck (2.2.1) ist genau, wenn es keine Linienüberlappung gibt; bei höheren Drücken als 3 bar aber muß die Überlappung berücksichtigt werden, indem man die Beiträge aller Linien für jede Frequenz zusammenzählt. Der gesamte Absorptionskoeffizient wird dann

$$\alpha(\nu) = \sum_J \alpha_J(\nu) = \sum_J N_J S_J g(\nu) \quad (2.2.3)$$

wobei die Summe über die Rotationsquantenzahlen der beitragenden Übergänge ist.

Mit dem angenommenen Wert 0.39 cm^{-1} für die Rotationskonstante B /8/, bei einer Temperatur von 400 K und beim Zusammenzählen von 10 Linien symmetrisch zur zentralen P20- bzw. R18-Linie unserer aus 16 % CO_2 , 8 % N_2 und 76 % He bestehenden Lasergasmischung ergeben sich für 1, 5, 10, 15 und 20 bar Druck die in den Abbildungen 1 und 2 gezeigten Spektren. Hier stellen die gestrichelten Linien den gesamten Absorptionskoeffizienten $\alpha(\nu)$, und die durchgezogenen Linien die Absorptionskoeffizienten jedes einzelnen Überganges dar. Die Abbildungen zeigen, daß der Absorptionskoeffizient noch etwa 30 % im P-Zweig und 16 % im R-Zweig bei 10 bar Druck schwankt, während bei 20 bar die Schwankung nur noch 4 % und 1.5 % des Maximums im P- bzw. R-Zweig ist. Solche Modulationen sind in den praktischen Anwendungen eines Lasers sehr wichtig, da sie die Durchstimmung zwischen den Linien erschweren. Bei 10 bar z.B. kann man nicht mit einem einzigen Resonator über mehrere Linien hinweg durchstimmen. Bei niedrigen Güten des Resonators bekommt man keine Emission im Verstärkungsminimum wegen des Frequenzzieheffekts. Bei höheren Güten kann der Zieheffekt vermindert werden, aber in diesem Fall führt die Modulation des Spektrums während des Durchstimmens in der Nähe der Verstärkungsmaxima zur Schädigung der optischen Elemente. Außerdem wird man, solange ein Verdacht auf einen Zieheffekt besteht, zur Sicherheit die Wellenlänge messen müssen, da man nicht mit Linearität zwischen Laserwellenlänge und Sinus des Gitterwinkels rechnen kann. Drücke bis etwa 20 bar sind also wünschenswert für eine problemlose Durchstimmung des CO_2 -Lasers. Der Bereich der handelsüblichen (UV-vorionisierten) Laser reicht nur bis etwa 10 bar.

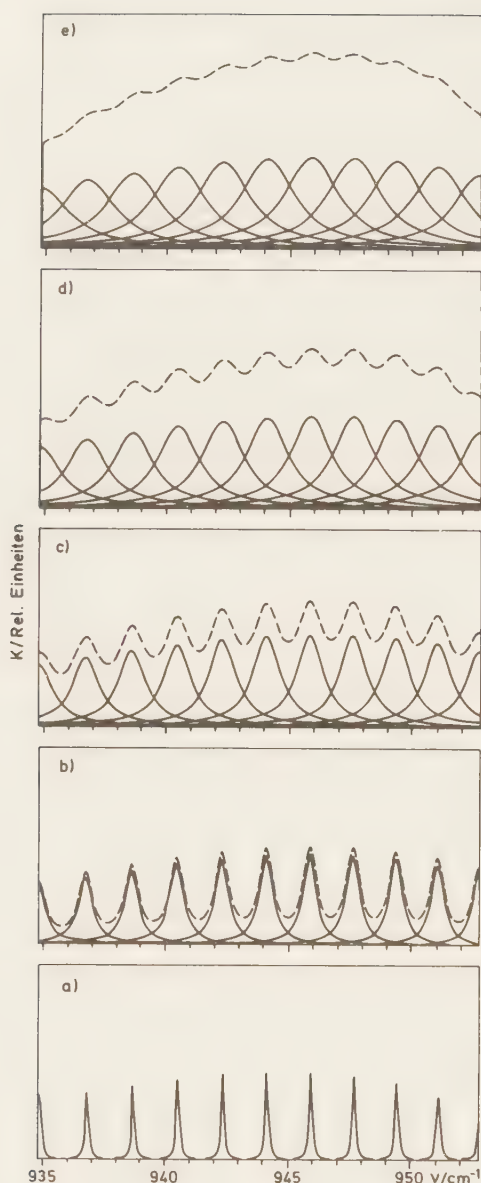


Abb. 1: Verbreiterung und Überlappung der Linien mit dem Druck im P-Zweig des CO_2 bei a) 1 bar; b) 5 bar; c) 10 bar; d) 15 bar und e) 20 bar einer Gasmischung aus 16 % CO_2 , 8 % N_2 und 76 % He. Die gestrichelten Linien stellen den gesamten Absorptionskoeffizienten, die durchgezogenen Linien die Absorptionskoeffizienten jeder einzelnen Linie dar.

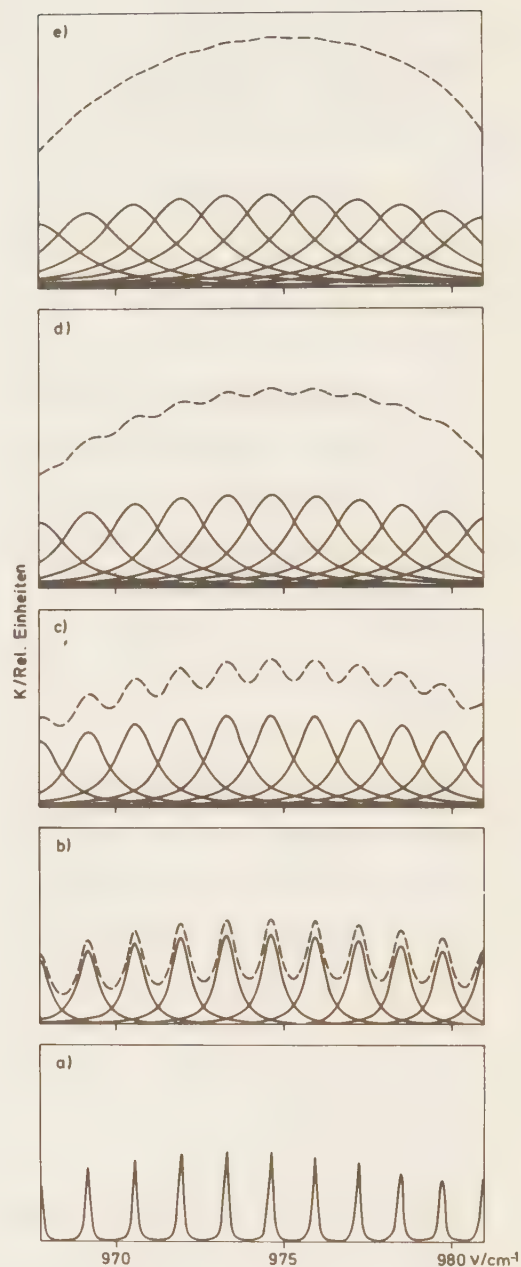


Abb. 2: Verbreiterung und Überlappung der Linien im R-Zweig des CO_2 , wie in Abb. 1.

2.3 Selbständige und unselbständige Entladungen

Bei Dauerstrichkohlendioxidlasern bei niederem Druck wird das Gas - wie bei den meisten Gaslasern - in einem langen Rohr durch eine Längsentladung angeregt. Bei höheren Drücken muß man, um die Verstärkung des Lasermediums konstant zu halten, die Anregungsleistung quadratisch mit dem Druck erhöhen /26/. Es ist aber schwierig, Temperaturerhöhung dabei zu vermeiden. Bei dem Versuch, einen solchen Laser bei höheren Drücken zu betreiben, führt die benötigte Pumpleistung zu einer Temperatursteigerung, die die unteren Laserzustände bevölkert. Damit nimmt die Verstärkung ab. Wenn man aber an Spitzen- statt an Durchschnittsleistungen interessiert ist, kann man Hochdrucklaser anders betreiben: Man kann kurze Anregungspulse mit niedrigen Wiederholfrequenzen und Durchschnittsleistungen benutzen. Die ersten Ergebnisse mit Pulsanregung wurden von Hill /27/ in einer rohrförmigen Längsentladung erreicht, in der Spannungen der Größenordnung von Megavolt nötig waren. Kurz danach wurde bei Atmosphärendruck-CO₂-Lasern die Technik der Querentladungen entwickelt /28/. Transversale Anregungen haben nur kurze Entladungslängen und große Entladungsquerschnitte. Die starken Felder, die nötig sind, um Durchbrüche in Hochdrucklasern zu erreichen, können deshalb mit viel niedrigeren Spannungen erzeugt werden. Außerdem ist die Impedanz solcher Entladungen niedrig, was eine schnelle Energieeinspeisung ins Lasermedium erlaubt. Das ist sehr wichtig, weil der Wirkungsgrad nur dann hoch wird, wenn die Anregungszeit kurz ist im Vergleich zur Lebensdauer des angeregten Zustandes. Seitdem ein Atmosphärendruck-CO₂-Laser zum ersten Mal durch eine Querentladung betrieben wurde /28/, sind verschiedene Methoden vorgeschlagen und verwendet worden, um noch höhere Drücke in CO₂-Lasern zu erreichen. Die Hauptschwierigkeit dabei ist, die Entladung über einen großen Querschnitt homogen zu halten.

In allen Entladungen spielen sich nebeneinander verschiedene Prozesse ab. Am übersichtlichsten sind die Entladungen, in denen nur die Bewegung der Ladungsträger und nicht deren Erzeugung berücksichtigt werden muß. Bei Entladungen, in denen die Ladungsträger durch einen nicht in der Entladung selbst beteiligten Prozeß erzeugt werden, wird der Strom von der Menge eingeführter Ladungsträger bestimmt. Wenn dieser Prozeß an der Kathode startet, ist der Strom i durch den Ausdruck /29, 30/

$$i = i_0 \exp(\alpha d) \quad (2.3.1)$$

für einen bestimmten Wert von E/p gegeben. Dabei sind E das elektrische Feld, p der Druck, i_0 der von außen erzeugte Strom von Primärelektronen, und d der Elektrodenabstand. α ist der erste Townsend-Koeffizient für Ionisierung, d.h. die Zahl der durch Stöße erzeugten Elektronen pro Primärelektron und pro Längeneinheit in der Richtung des angelegten Feldes. Dieser Koeffizient ist seinerseits über weite Bereiche eine Funktion von E/p /29, 31/:

$$\alpha = A p \exp (-B p/E) . \quad (2.3.2)$$

A und B sind Konstanten, die vom Medium und von der Temperatur abhängen. Den exponentiellen Prozeß, in dem sich die primären Ladungsträger vermehren und einen Strom wie den in der Gl. (2.3.1) beschriebenen erzeugen, nennt man eine Townsend-Entladung oder eine Townsend-Lawine. Wenn in diesem Bereich von E/p die anfängliche Zahl der Ladungsträger gleich Null ist, ist auch der Strom gleich Null. Deswegen werden solche Entladungen unselbständig genannt. Nimmt das elektrische Feld E zu, so nimmt zunächst der Strom i gemäß Gl. (2.3.1) und (2.3.2) zu, und das führt schließlich zum Durchbruch des Mediums, d.h. zu einem Bereich, in dem der Strom um einige Größenordnungen zunimmt fast ohne Zunahme des Feldes. Der Durchbruch kann

entweder in der Form einer homogenen Glimmentladung oder durch das Entstehen eines funken- oder bogenförmigen ionisierten Kanals erreicht werden. Dies ist kein umkehrbarer Prozeß, d.h. eine Wiederverminderung des Feldes wird nicht nochmals zu einem Townsend-Bereich führen, sondern zu einer Korona oder einem partiellen Durchbruch. Wenn der Durchbruch geschieht, fließt ein Strom, der jetzt nur von dem äußeren Stromkreis bestimmt wird. Er ist von der äußeren Ionisierungsquelle unabhängig und fließt weiter, auch wenn diese Quelle ausgeschaltet ist. Die geringfügige Anfangsfremdionisation, die als eine Vorionisierung gedient hat, ist unwesentlich klein geworden gegen die von der Entladung selbst erzeugten zusätzlichen Ladungsträger. Die Entladung erzeugt sich dann ihre Träger selbst und wird deswegen selbständig genannt. Eine ganz allgemeine Regel für die Bedingungen, die eine Entladung zur Selbständigkeit bringen können, lautet: "Jeder Ladungsträger muß im Mittel gerade so stark ionisieren, daß er - unmittelbar oder auch über beliebige und beliebig viele Zwischenprozesse - unter Einrechnung aller Verluste einen neuen gleichartigen Ladungsträger als seinen Nachfolger wieder an seine Stelle bringt" /32/.

2.4 Anregungsmethoden bei Hochdruck-CO₂-Lasern

Hochdruckgaslaser können durch selbständige ebenso wie durch unselbständige Querentladungen angeregt werden. In beiden Fällen aber braucht die Entladung die Einführung einer gewissen Menge von Ladungsträgern. Bei selbständigen Entladungen dient diese Trägererzeugung lediglich dazu, den Anfang des Prozesses zu ermöglichen; nachdem das Feld und der Strom den Durchbruch erreichen, wird keine äußere Trägerquelle mehr gebraucht. Nach diesem Prinzip wurden die ersten Atmosphärendruck-CO₂-Laser entwickelt /11, 14, 15, 28, 33, 34/. Die anfängliche Trägererzeugung wird Vor-

ionisierung genannt. Sie erlaubt eine gleichförmige Entladung, indem sie die Effekte der Oberflächenunregelmäßigkeiten der Elektroden vermindert, sowie die Neigung zum Entstehen heller Entladungsfunken. Unselbständige Entladungen sind andererseits im Zusammenhang mit einem Elektronenstrahl in Hochdruck-CO₂-Lasern verwendet worden /2, 3, 35-42/. Bei dieser Methode werden so viele Elektroden in das Lasermedium injiziert, daß der Strom wirklich durch den Elektronenstrahl kontrolliert wird und immer bogenfrei ist. Hier spielen Durchbruchprozesse keine Rolle. Der Vorteil der Benutzung des Elektronenstrahls in einer unselbständigen Entladung besteht darin, daß die erzeugte Ladungsträgerdichte im wesentlichen unabhängig vom angelegten Feld ist. Das erlaubt die Anwendung viel schwächerer elektrischer Felder als diejenigen, die für Selbständigkeit nötig sind. Man kann also einen Wert von E/p anwenden, der dem maximalen Wirkungsgrad entspricht.

Unter den verschiedenen vorgeschlagenen Methoden zur Anregung von Hochdruck-CO₂-Lasern erwähnen wir die schnelle Ultrahochspannungsentladung /43, 44/, die Doppelentladungstechnik /5, 45/, das Hochfrequenz-Pumpen /46/, das optische Pumpen /47/, die UV-vorionisierte selbständige Entladung /19, 48-56/, die Röntgenstrahlungsvorionisierte selbständige Entladung /57/, und die elektronenstrahlkontrollierte unselbständige Entladung /2, 3, 35-42/. Von diesen haben die fünf letzten die Fähigkeit bewiesen, höhere Drücke als 10 bar anregen zu können, und nur die letzten drei können bei solchen Drücken hohe Pulsenergien liefern. Hier wird noch eine neue Art von Anregung behandelt, nämlich die durch einen Elektronenstrahl vorionisierte selbständige Entladung /58/.

Die Techniken der vorionisierten Entladungen sind im Zusammenhang mit UV-vorionisierten Lasern gut entwickelt worden /19, 48-56/. UV-vorionisierte Hochdruck-CO₂-Laser

zeigen eine gute Reproduzierbarkeit, lange Lebensdauern und hohe Wiederholfrequenzen. Leider sind sie bei höheren Drücken als 10 bar schwer zu betreiben. Bei 10 bar (siehe Abb. 1, 2) bleibt noch eine große Modulation des Verstärkungsspektrums übrig, die die Frequenzabstimmung sehr erschwert (siehe auch Abb. 10). Wie erwähnt, muß man normalerweise bei solchen Geräten den Auskoppelspiegel wechseln, wenn man von einem Maximum zu einem Minimum zwischen zwei Linien durchstimmen will /59/. Einige UV-vorionisierte CO_2 -Laser wurden sogar bis 15 bar Druck betrieben, aber mit hohem Wert von E/p , über $40 \text{ kV cm}^{-1} \text{ bar}^{-1}$ /9/ oder mit hohem Anteil von He im Gasgemisch, über 90 % /19/, was einen kleinen energetischen Wirkungsgrad bedeutet.

Für eine wirksame Vorionisierung einer selbständigen Entladung ist im Lasermedium eine anfängliche Elektronendichte erforderlich, die bei 20 bar Gasgemisch über 10^8 cm^{-3} beträgt, wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird. Bei einem typischen elektronenstrahlkontrollierten CO_2 -Laser ist die Elektronendichte, die in der Kammer durch den Elektronenstrahl erzeugt wird, andererseits von der Größenordnung 10^{12} bis 10^{14} cm^{-3} . Das ist besonders günstig für Laser, die mit sehr hohem Druck arbeiten, und für Verstärker in Hochleistungslasersystemen /39/. Solche Laser können im Prinzip maximale Wirkungsgrade erreichen durch Wahl von optimalen Werten von E/p . Unsere eigene Erfahrung mit solchen Geräten /60/ zeigte aber eine schlechte Reproduzierbarkeit. Die Intensität des Elektronenstrahls änderte sich stark zwischen zwei aufeinander folgenden Schüssen und war außerdem nicht gleichförmig längs der Elektroden. Diese Unregelmäßigkeiten verursachten in der Hauptentladung solche Schwankungen, daß die Energie der Laserpulse zwischen null und Werten schwankte, die genügten, um die optischen Elemente zu zerstören. Darüber hinaus ist die Anwendung von elektronenstrahlkontrollierten Lasern in der Praxis durch Probleme mit der Lebensdauer der Fenster- und Kathodenfolien, Wirkungsgrad und Hochspannungsanforderungen sehr begrenzt.

2.5 Der Elektronenstrahl als Vorionisierung

Zwei Prozesse werden allgemein als verantwortlich für die meisten Fälle von Durchbruch in Gasen anerkannt /32, 61-63/. Zunächst bildet sich eine Townsend-Lawine, in der einige primäre Elektronen im elektrischen Feld beschleunigt werden, auf Gasmoleküle stoßen und daraus Sekundärelektronen freisetzen. Diese werden ihrerseits beschleunigt, und so entstehen Elektronenlawinen. Die gesamte Zahl der Elektronen in einer Lawine ist

$$N_e = \exp (\alpha x) \quad , \quad (2.5.1)$$

wobei α der erste Townsend-Koeffizient für Ionisierung und x die Entfernung zum Ort der Erzeugung der primären Elektronen sind. Das von der relativen Bewegung zwischen Elektronen und positiven Ionen entstandene Raumladungsfeld ist dem angelegten elektrischen Feld gegenüber als sehr schwach angenommen. Die Fortdauer des Elektronenstroms wird gewährleistet durch sekundäre Elektronenemissionen aus der Kathode, verursacht durch Photonen und positive Ionen. Die Bedingung für eine selbsttändige Entladung ist durch die Gleichung

$$\alpha d = \log [(1 + \gamma) / \gamma] \quad (2.5.2)$$

gegeben, wobei d der Elektrodenabstand ist. γ ist der zweite Townsend-Koeffizient, der die gesamte Wahrscheinlichkeit von sekundärer Elektronenemission in der Kathode darstellt.

Der zweite Prozeß geschieht, wenn die Zahl der Elektronen in jeder Lawine einen kritischen Wert erreicht. In diesem Fall ist das Feld jeder Lawine vergleichbar mit dem angelegten elektrischen Feld. Dann führt eine zufällige Zunahme lokaler Ionisationen zur Entstehung eines leitfähigen

Kanals, der den Raum zwischen den Elektroden durchquert und die Entladung durch Strömungen zur Selbständigkeit bringt. Dies ist der Prozeß, der bei Entladungen in Hochdruckgasen am meisten für die Entstehung von Funken oder Bogen verantwortlich ist, vorausgesetzt, daß der Elektrodenabstand größer ist als ein kritischer Abstand d_{kr} , der durch das sogenannte Raether-Kriterium /63/ gegeben wird:

$$\int_0^{d_{kr}} \alpha(x) dx = \log(19.6 \epsilon_0 E \lambda_e c_e d_{kr} / e u_e) \quad (2.5.3)$$

wobei $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$ A·s/V·m die Dielektrizitätskonstante, $e = 1.60 \times 10^{-19}$ A·s die Ladung des Elektrons, E das angelegte elektrische Feld, λ_e die mittlere freie Weglänge, c_e die thermische Geschwindigkeit und u_e die Triftgeschwindigkeit der Elektronen sind. Die freie Weglänge der Elektronen ist zum Kehrwert des Druckes proportional /63/, d.h. $\lambda = kT/pQ$, wobei k die Boltzmann-Konstante und Q der Querschnitt für Impulsaustausch zwischen Elektron und Molekül sind. Wenn man also α als konstant annimmt, kann das Raether-Kriterium

$$\alpha d_k = \log \left(4.5 \times 10^{-12} \frac{E}{p} \frac{1}{Q} \frac{c_e}{u_e} \right) + \log d_{kr} \quad (2.5.4)$$

geschrieben werden. Die Größen Q , c_e und u_e sind in der Literatur als Funktion der Energie der Elektronen /31/ und von E/p /64, 65/ gegeben. Das erste Glied rechts in der Gl. (2.5.4) ändert sich wenig für Werte von E/p , die in Gaslaserentladungen angewendet werden (5 - 20 kV/cm·bar). Für ein vorwiegend aus He bestehendes Gasgemisch und für $E/p = 12 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ ist $c_e = 1.3 \times 10^6$ m/s, $u_e = 4.3 \times 10^4$ m/s und $Q = 6.1 \times 10^{-20}$ m², und die Gl. (2.5.4) wird, in MKS-Einheiten:

$$\alpha d_{kr} = 24 + \log d_{kr} \quad (2.5.5)$$

Nimmt man für die Gl. (2.3.2) die Werte von $A = 2.243 \times 10^3 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ und $B = 6.15 \times 10^4 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ von /31/ an, so ergeben sich für eine Atmosphärendruckentladung $\alpha = 13.3 \text{ cm}^{-1}$ und $d_{kr} = 1.5 \text{ cm}$. Bei 20 bar und $E/p = 8.2 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ andererseits, was dem Fall unseres Lasers entspricht, $\alpha = 24.8 \text{ cm}^{-1}$ und $d_{kr} = 0.7 \text{ cm}$.

Das Raether-Kriterium stellt die Existenzbedingung für Strömungsentladungen dar, ohne aber zu berücksichtigen, daß eine Menge von Vorionisierungselektronen anwesend sein kann. Verantwortlich für das Entstehen der Strömungen sind die hohen Gradienten, die von den intensiven örtlichen Lawinenfeldern verursacht werden. Wenn aber die Dichte der Lawinen zunimmt, verringern sich diese Gradienten, so daß man bei genügend hohen Lawinendichten eine homogene Ladungsverteilung erwarten kann. In diesem Fall spielen Strömungen in der Entladung keine Rolle mehr. Die Bedingung für diese homogene Feldverteilung ist, daß sich die Lawinen überlappen, bevor ihre Felder vergleichbar mit dem angelegten elektrischen Feld werden. Wenn n_e die anfängliche Dichte der Primärelektronen ist und man annimmt, daß jedes Primärelektron eine Lawine erzeugt, dann muß der ursprüngliche durchschnittliche Abstand zwischen den Primärelektronen, $n_e^{-1/3}$, gleich oder kleiner sein als die transversale Ausdehnung jeder Lawine in dem kritischen Punkt, der vom Raether-Kriterium (2.5.5) bestimmt wird. Diese Bedingung lautet also

$$n_e \geq r_{kr}^{-3} \quad (2.5.6)$$

wobei r_{kr} die transversale Ausdehnung einer Lawine ist, an der Stelle, deren Entfernung von der Kathode d_{kr} ist. Die transversale Ausdehnung einer Lawine ist ihrerseits von der kinetischen Gastheorie /63, 64/ als

$$r = \left(\frac{2}{3} \frac{c_e}{u_e} \lambda_e d \right)^{1/2} = \left(\frac{2}{3} \frac{c_e}{u_e} \frac{1}{nQ} d \right)^{1/2} \quad (2.5.7)$$

gegeben, wobei n die Dichte des Gases und d die Entfernung zwischen der Lawinenfront und der Kathode sind. Daher kann die Bedingung, die nach dem Raether-Kriterium eine strömungslose Entladung sicherstellt, als

$$n_e \geq \left(\frac{2}{3} \frac{c_e}{u_e} \frac{1}{nQ} d_{kr} \right)^{-3/2} \quad (2.5.8)$$

geschrieben werden. Mit den vorher benutzten Werten ergibt sich, daß bei $E/p = 12 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ die minimale Vorionisierungsdichte von $10^4 \text{ Elektronen} \cdot \text{cm}^{-3}$ für einen CO_2 -TEA-Laser nötig ist, während bei 20 bar und mit demselben Wert von E/p dieses Minimum ungefähr bei 10^8 cm^{-3} liegt.

Bei elektronenstrahlkontrollierten Lasern werden andererseits Ionendichten von 10^{12} bis 10^{14} cm^{-3} in der Laserkammer erzeugt. Offenbar genügen schon viel niedrigere Intensitäten eines Elektronenstrahls zur Vorionisierung einer selbständigen Entladung. Diese Anwendung eines Elektronenstrahls haben wir durchgeführt. Die Einzelheiten und Ergebnisse werden in den übrigen Teilen dieses Kapitels beschrieben.

2.6 Experimenteller Aufbau des Lasers

Der Querschnitt der Laserkammer ist in Abb. 3 gezeigt. Der Elektronenstrahl wird in der Vakuumkammer aus einer Tantalfolie durch Kaltkathodenemission erzeugt. Er tritt in die Hochdruckkammer durch ein Titan-Lennardfenster ein. Diese Kanone wurde zuerst mit einem elektronenstrahlkontrollierten Laser benutzt /60/, dessen Schaltbild in Abb. 4 zum Vergleich mit unserer Anlage angegeben wird. Zwei Punkte kommen uns in diesem Schema bemerkenswert vor:

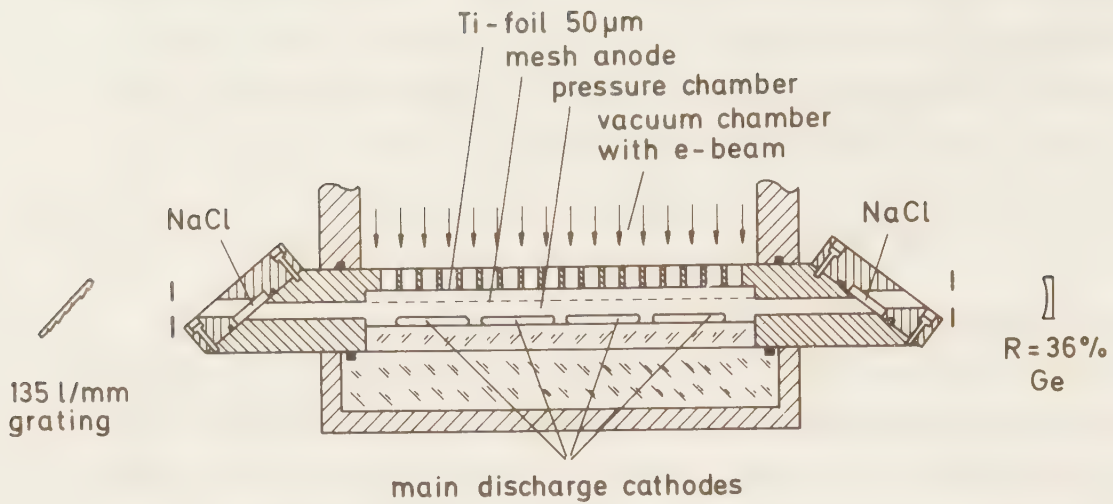


Abb. 3: Querschnitt durch die Laserkammer

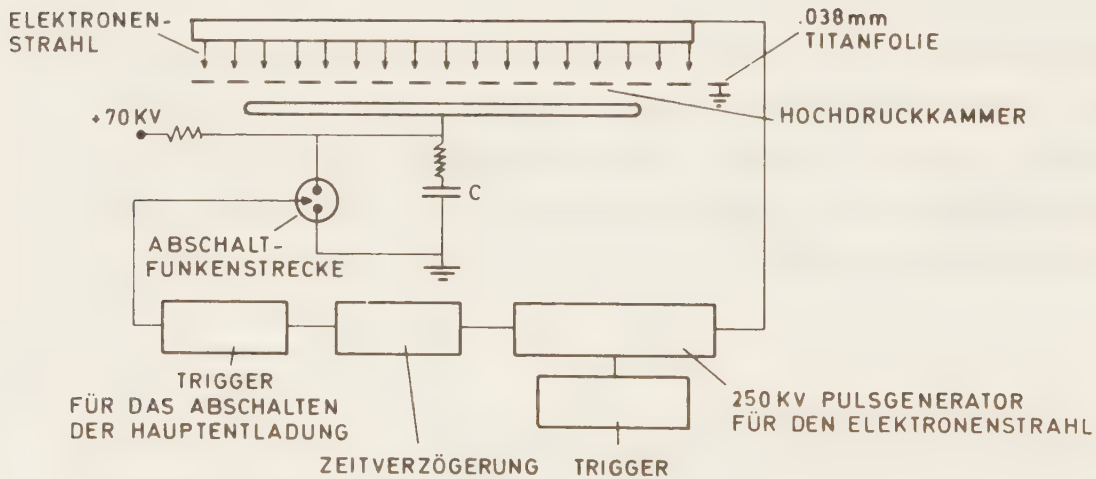


Abb. 4: Schaltbild eines elektronenstrahlkontrollierten CO_2 -Lasers. $C = 325 \text{ nF}$

1. Die Hauptentladung braucht keine Schaltfunkenstrecke; wenn der Elektronenstrahl in Gang gesetzt wird, liegt die Hochspannung schon an den Elektroden an und die Entladung dauert im wesentlichen so lange, wie sowohl Hochspannung als auch Elektronenstrahl anwesend sind.

2. Eine Abschaltfunkenstrecke wird benutzt. Ihre Aufgabe ist es, die Entladung zu beenden, bevor sie sich in einen Bogen umwandelt /66/. Das heißt, daß die Entladung unterbrochen wird, bevor der größte Anteil der im großen Kondensator C gespeicherten Energie verwendet wird. Damit ist der ausgewählte Wert von E/p während der Entladung im wesentlichen konstant.

In unserem Aufbau mit selbständiger Entladung, in Abb. 5 gezeigt, wird demgegenüber die ganze Energie, die in den Kondensatoren gespeichert ist, im Lasermedium deponiert. Da dieses System keine so hohe Ionisationsdichte braucht wie der Elektronenstrahl erzeugen kann, wird eine dickere (50 statt 30 μm) Ti-Folie zwischen die Hochvakuum- und die Hochdruckkammer eingesetzt, und der Elektronenstrahl selbst kann durch niedrigere Spannung erzeugt werden. Der

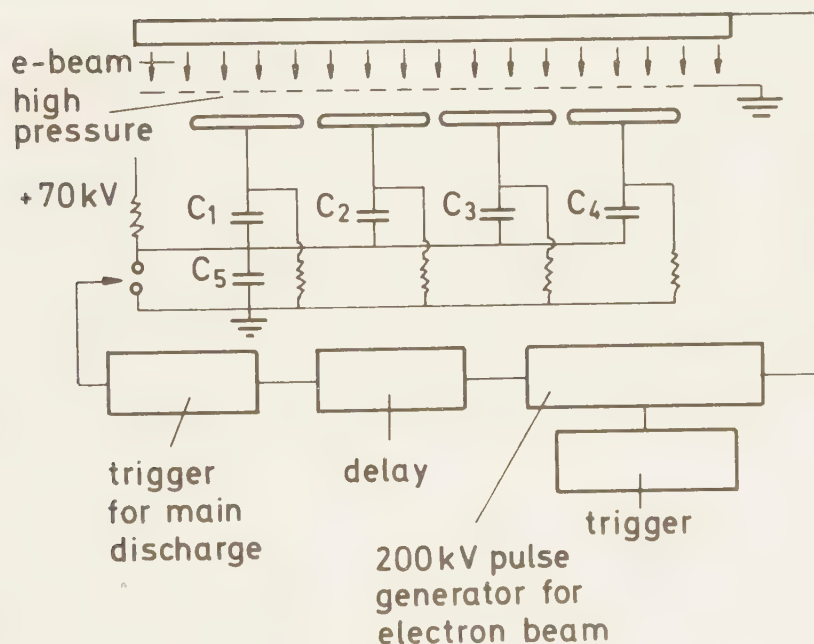


Abb. 5: Schaltbild des durch Elektronenstrahl vorionisierten CO₂-Lasers.

$$C_1 = C_2 = C_3 = C_4 = 4\text{nF}; C_5 = 1.35\text{ nF}$$

erste dieser Faktoren bedeutet einen höheren Wirkungsgrad, während die beiden letzten längere Lebensdauer für die Ti-Folie und in gewissem Maß auch für die Ta-Kathode bedeuten.

Nach Evakuieren der Laserkammer wurde der Teil des Elektronenstrahls gemessen, der durch die 50 μm dicke Ti-Folie in die Kammer gelangt. Dieser Strom schwankte um einen Faktor größer als 2 von Schuß zu Schuß, mit einer maximalen Durchschnittsdichte von $0.12 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$, was eine Größenordnung niedriger ist als die Intensitäten, die bei elektronenstrahlkontrollierten Lasern üblich sind /38, 42/. Diese Intensität, längs der Elektroden gemessen, erwies sich als sehr inhomogen. Derselbe Elektronenstrahl wurde in der kontrollierten Version mit 250 kV-Pulsen und als Vorionisierung mit 200 kV-Pulsen betrieben.

Die Hauptentladungskathoden bestehen aus vier ebenen Aluminiumscheiben mit runden Rändern, in einer Reihe ausgerichtet und unabhängig mit je einem geladenen Kondensator verbunden. Jede regt ein gleiches Gasvolumen von $0.85 \times 0.85 \times 11.20 \text{ cm}^3$ an. Diese Konstruktion erlaubte die Durchführung verschiedener Experimente, in denen die Entladungslänge geändert wurde, und stellte gleichzeitig sicher, daß jedes Viertel der gesamten Entladungslänge denselben Anteil der Energie vom Ladegerät aufnimmt, obwohl die Intensität des Elektronenstrahls sehr verschieden in jedem Viertel ist.

Um die Hochspannung zu erzeugen, die für eine selbständige Entladung nötig ist, wurde ein spannungsverdoppelnder LC-Inversionsgenerator /34, 67/ angewendet. Jeder der 4nF Kondensatoren $C_1, \dots, C_4$ ist mit einer Elektrode durch ein 3 m langes Koaxialkabel verbunden, und der 1.35 nF-Kondensator C_5 , parallel mit der Funkenstrecke geschaltet, ist

für die Spannungsverdoppelung verantwortlich. Die höchste benutzte Ladespannung war 70 kV, so daß die entsprechende Energie 42,5 J war. Abbildung 6 zeigt den typischen Stromverlauf eines Pulses.



Abb. 6:

Entladungsstrom

Zeitskala: 500 ns/Skalenteil

Die 80 cm lange Laserkammer ist an jedem ihrer beiden Enden durch 10 mm dicke, im Brewsterwinkel angeflanschte NaCl-Scheiben abgeschlossen, und die freie Öffnung hat einen Durchmesser von 7 mm.

2.7 Ergebnisse mit der selbständigen Entladung

Bogenfreie, homogene Glimmentladung wurde mit verschiedenen Drücken (bis 20 bar), Ladespannungen (bis 70 kV) und Kondensatoren durchgeführt. In Experimenten mit einer einzigen an einen 12 nF-Kondensator angeschlossenen Elektrode war die maximale im Lasermedium deponierte Energie $360 \text{ J.l}^{-1}.\text{bar}^{-1}$ bei 10 bar Druck, und $500 \text{ J.l}^{-1}.\text{bar}^{-1}$ bei 5 bar Druck. Das weist auf die Möglichkeiten dieses Systems hin, besonders wenn man berücksichtigt, daß diese Ergebnisse ohne ein spezielles Elektrodenprofil erreicht worden sind. Trotz der unterschiedlichen Vorionisierungsdichten an verschiedenen Stellen längs der Kammer war das Verhalten der Entladung gleich für alle vier Elektroden, und obwohl der Elektronenstrahl von Puls zu Puls

stark fluktuierte, zeigte der Strom der Hauptentladung eine sehr gute Reproduzierbarkeit, die keine größere Schwankung als 10 % in der Laserpulsenergie verursachte.

Während der Experimente wurden verschiedene Arten von Resonatoren benutzt, und die Pulsenergie war immer durch Beschädigung der optischen Bauteile begrenzt. Wir haben also keinen Versuch gemacht, die Leistung durch Änderung der Gasmischung zu verbessern. Diese war immer 16 % CO_2 , 8 % N_2 und 76 % He. Mit dem aus einem goldbeschichteten konkaven Kupferspiegel mit 4 m Krümmungsradius und einem 6 mm dicken, ebenen, 36 % reflektierenden Ge-Auskoppler bestehenden Resonator z.B. erreichte die maximale Pulsenergie bei 10 bar Druck und 55 kV, trotz der Schäden der Spiegel, 1 J. Das entspricht einer Energiedichte von 5 J.cm^{-2} , einem gesamten Wirkungsgrad (dem Verhältnis zwischen der Laserpulsenergie und der in der Hauptentladung deponierten Energie) von 3.8 % und einem Modenwirkungsgrad (dem Verhältnis zwischen der Laserpulsenergie und der in die TEM_{00} -Mode deponierten Energie) von 14 %. Um Beschädigung der optischen Elemente zu vermeiden, wurde die Laserpulsenergie während der Experimente auf etwa 200 mJ begrenzt.

Solange der Elektronenstrahl mit 250 keV Energie (vor der Ti-Folie) für unselbständige Entladung benutzt wurde, mußte die Tantalkathode ungefähr alle 300 Schüsse ersetzt werden. Das 38 μm dicke Ti-Fenster hielt dann höchstens 500 Schüsse /59/. Bei der vorionisierten Betriebsweise andererseits, in der der Elektronenstrahl mit 200 keV benutzt wird, hielt die Ta-Kathode etwa 1000 Schüsse, und das 50 μm Ti-Fenster wurde noch nie während der Gesamtzahl von 20 000 Schüssen ersetzt. Die Ta-Kathode wurde schließlich durch eine aus Kohlenfaserfilz bestehende Kathode ersetzt, die dieselbe Stromdichte erzeugt und deren erwartete Lebensdauer größer als 10^7 Schüsse ist /68, 69/.

Bei 20 bar beträgt die Halbwertsbreite der Laserpulse etwa 50 ns. In Abb. 7 ist der zeitliche Verlauf eines typischen Pulses gegeben, der offensichtlich keinen weiteren "Schwanz" hinter sich hat. Das räumliche Profil der Pulse ist nahezu gaußförmig, eine Tatsache, die in den im Kap. 3 beschriebenen Experimenten bewiesen und benutzt wird.

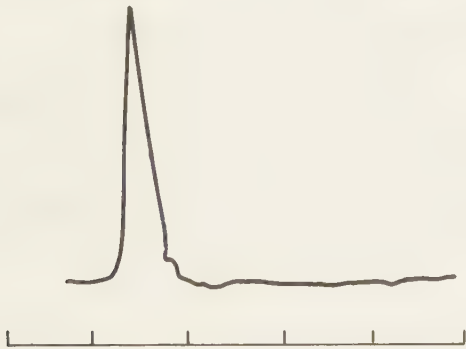


Abb. 7:

Laserpuls. Zeitskala:
200 ns/Skalenteil

2.8 Frequenzabstimmung mit dem Hochdruck-Kohlendioxidlaser

Um das spektrale Verhalten des Lasers zu untersuchen, wurde ein Gitterspektrograph mit 2.5 m Brennweite gebaut, der in Abb. 8 gezeigt ist. Der Spektrograph besteht aus einem Spiegelteleskop, einem 130 mm breiten Beugungsgitter mit 150 Linien/mm und einem Sammelspiegel mit 5 m Krümmungsradius. Die Spektren sind in der Brennebene entweder auf Thermopapier oder auf einem Zeilendetektor aufgenommen worden. Das Laserbündel wird zuerst im Teleskop aufgeweitet, dann werden die verschiedenen Frequenzen durch das Gitter zerlegt und vom konkaven Spiegel auf die Detek-

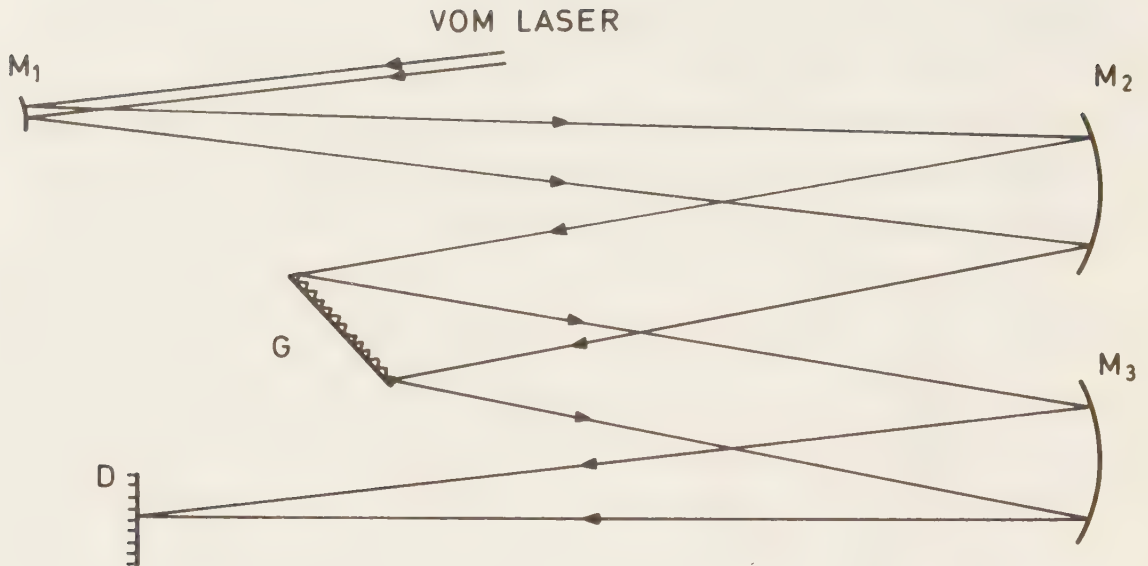


Abb. 8 Gitterspektrograph

M_1 = Konvexspiegel, Krümmungsradius = 20 cm

M_2 = Konkavspiegel, Krümmungsradius = 2.5 m

M_3 = Konkavspiegel, Krümmungsradius = 5 m

G = 130 cm breites Beugungsgitter mit 150 Linien/mm

D = Detektor

toren fokussiert. Mit einem mit Gold bedampften konkaven Kupferspiegel und einem 52 % reflektierenden ebenen Ge-Auskoppler emittierte der Laser bei der 10P18-Linie, mit schwächerer Emission auch bei der 10P20-Linie bei niedrigeren Drücken als 12 bar, und in der Gegend der 10R16 mit einem breiten Bereich von etwa 3 cm^{-1} bei höheren Drücken. Dieser Unterschied ist zu erwarten, da die Überlappung im R-Zweig, wegen der kleineren Abstände zwischen den Linien, wirksamer ist als im P-Zweig, wie in der Abb. 2 zu erkennen ist.

Bei 20 bar, mit derselben Optik, besteht das Laserspektrum aus 19 getrennten schmalen Banden um die 10R16-Linie herum, mit einem gesamten Spektralbereich von etwa 3.7 cm^{-1} , wie in Abb. 9a gezeigt. Der Abstand zwischen benachbarten Linien ist 0.207 cm^{-1} . Das entspricht dem freien Spektralbereich der 6 mm dicken Germaniumscheibe, die als Auskoppler benutzt wurde, und deren Entspiegelung offenbar nicht perfekt war. Diese Beobachtung weist andererseits darauf hin, daß Spektroskopie innerhalb des Resonators mit diesem Laser möglich sein müßte, und dieser Versuch ist im Kap. 4 beschrieben. Während der Experimente wurde der Laser mit verschiedenen Arten von Resonatoren verwendet, und Abb. 9 gibt davon eine schematische Zusammenfassung.

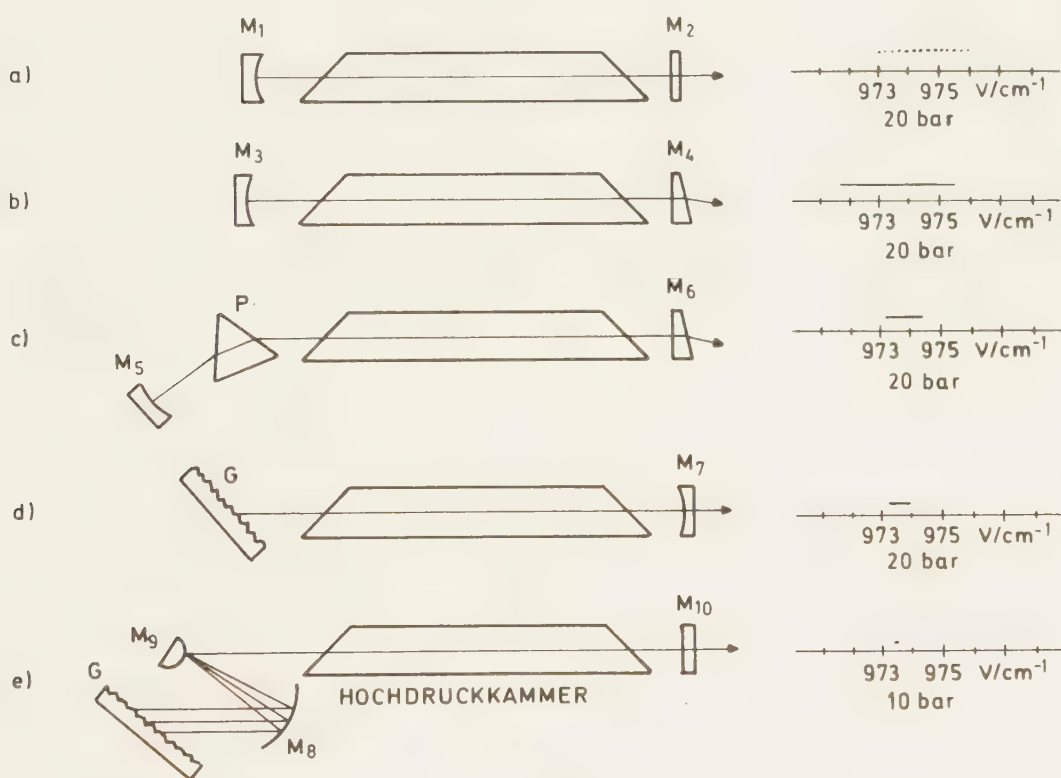


Abb. 9: Resonatoren, die mit dem Hochdruck- CO_2 -Laser verwendet worden sind, und die entsprechenden Emissionsspektren.

Frequenzabstimmung mit einem Beugungsgitter ohne Aufweitung durch ein Teleskop, wie in Abb. 9d gezeigt, wurde mit 10, 15 und 20 bar ausgeführt, um die Wirkung des Druckes auf die Abstimmbarkeit zu untersuchen. Der Resonator bestand in diesem Fall aus einem Beugungsgitter mit 135 Linien/mm und einem Germanium-Konkavspiegel mit 10 m Krümmungsradius und 50 % Reflexionsvermögen, 1.5 m vom Gitter entfernt. Das Ergebnis ist in Abb. 10 (a-c) gezeigt. Hier wurde der Laserresonator durch das Gitter vor jedem Schuß auf eine Frequenz abgestimmt und das Thermopapier in der Brennebene des Spektrographs gleichzeitig proportional zum Gitterwinkel senkrecht verschoben.

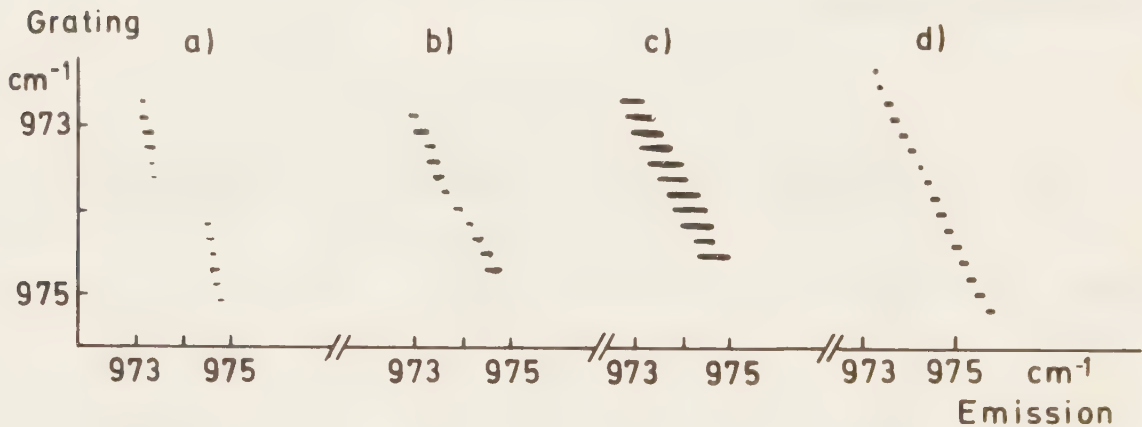


Abb. 10: Emissionsspektren mit Gitterabstimmung bei a) 10 bar, b) 15 bar, c) 20 bar und d) 10 bar mit einem Aufweitungsteleskop im Resonator. Das Thermopapier wurde zwischen den Schüssen senkrecht verschoben und das Lasergitter gedreht, so daß die senkrechte und die waagerechte Skala den erwarteten, bzw. den wirklichen Emissionsfrequenzen entspricht. Bemerkenswert ist die lineare Abhängigkeit der Frequenz vom Sinus des Gitterwinkels bei 20 bar auch ohne Teleskop.

Die senkrechten und waagerechten Skalen stellen also die Resonanzfrequenzen des Resonators bzw. die entsprechenden wirklichen Laseremissionsfrequenzen dar. Bei 10 bar ist eine kontinuierliche Abstimmung zwischen den Linien mit dieser Optik nicht erreicht worden. Bei 15 bar bleiben noch ein beträchtlicher Frequenzzieheffekt und eine Intensitätsmodulation übrig, aber bei 20 bar verschwindet der Zieheffekt, die Modulation wird vermindert und eine glatte Abstimmbarkeit wird erreicht. Das Emissionsspektrum ist dann bei jedem Schuß eine kontinuierliche, etwa $0,6\text{cm}^{-1}$ breite Struktur.

Die Abstimmung mit einem Aufweitungsteleskop im Resonator, wie in der Abb. 9e, erlaubt eine scharfe Einstellung der Emissionsfrequenz und vermeidet gleichzeitig Beschädigung des Gitters. Abbildung 10 d zeigt das Ergebnis des Abstimmversuches bei 10 bar in diesem Fall. In unseren Experimenten haben wir uns andererseits immer um breitbandige Emission bemüht. In dieser Hinsicht erweist sich die Abstimmung mit einem NaCl-Prisma allein, wie in Abb. 9c), als sehr günstig. Diese letzte Methode ist in den Experimenten mit breitbandiger Absorption benutzt worden.

2.9 Schlußfolgerung

In diesem Kapitel wurde eine neue Art von Anregung für CO_2 -Laser behandelt, nämlich die durch einen Elektronenstrahl vorionisierte selbständige Entladung. Diese Anregungsmethode sieht vielversprechend aus, da sie die guten Eigenschaften der UV-Vorionisierung und der Elektronenstrahl-Kontrolle in sich vereinigt. Die Anwendungsmöglichkeiten dieser Apparatur können durch die in den nächsten Kapiteln beschriebenen Experimente gut illustriert werden.

3. Vielfotonenanregung von SF₆ mit breitbandiger CO₂-Laserstrahlung

3.1 Einleitung

Die Anwendung von Lasern in der Auslösung chemischer Reaktionen hat sich in den letzten Jahren so verallgemeinert, daß sie heutzutage ein ganzes Forschungsfeld bildet. Oft handelt es sich um Prozesse, die nur den elektronischen Grundzustand betreffen, in dem sich die Molekülenergie in Schwingungs-, Rotations- und Translationsfreiheitsgraden verteilt. Wenn die in diesen Freiheitsgraden gespeicherte Energie die sogenannte Aktivierungsenergie überschreitet, werden bestimmte chemische Reaktionen möglich. Diese Reaktionen werden normalerweise als thermisch bezeichnet, da sie im thermischen Gleichgewicht stattfinden. Es gibt aber die Möglichkeit, die Geschwindigkeit solcher Reaktionen durch den Einsatz intensiver Infrarotstrahlung zu erhöhen, die eine Nichtgleichgewichts-Schwingungsanregung erzeugen kann. In diesem Fall bekommen die Moleküle beträchtliche innere Energie und können an verschiedenen chemischen Prozessen teilnehmen. Die Art von Reaktionen, die in dieser Hinsicht bis heute am meisten erforscht wurde, ist wahrscheinlich die Infrarot-Vielfotonenabsorption und -dissoziation von mehratomigen Molekülen. In dieser Art von Reaktion wird eine Niederdruck-Gasprobe durch intensive Laserstrahlung bestrahlt. Bei günstigen Bedingungen absorbieren deren Moleküle vom Laserfeld genügend Energie zum Dissoziieren. Da der Wirkungsgrad der Absorption normalerweise stark frequenzabhängig ist, können diese Reaktionen eine sehr hohe Isotopenselektivität zeigen, wenn die Isotopenverschiebung der Absorptionsbanden einige Wellenzahlen ist. In erster Linie die offensichtliche praktische Anwendung, aber auch rein physikalische (und noch offene) Fragen sind für die inzwischen zahl-

reiche Literatur über Vielphotonenanregung verantwortlich (Lit. /70-72/ bietet einen umfassenden Überblick der Entwicklung und des aktuellen Standes der Forschung auf diesem Gebiet.) Trotzdem bleibt noch unbekannt, auf welche Weise ein isoliertes Molekül in der Anwesenheit eines starken monochromatischen Laserfeldes genügend Photonen zum Dissoziieren absorbieren kann. Dazu muß ein einziges Molekül einige zig Photonen absorbieren. Um das Problem besser darzustellen, zeigt Abb. 11 schematisch die Schwingungsenergieniveaus eines zweiatomigen Moleküls und die Energie eines Photons, dessen Frequenz in Resonanz mit dem ersten Schwingungsübergang dieses Moleküls ist. Diese Frequenz ist offenbar wegen der Anharmonizität der oberen Niveaus nicht mehr mit den weiteren Übergängen in Resonanz. Deswegen wurde die Dissoziation zweiatomiger Moleküle durch Vielphotonenabsorption noch nie beobachtet. Sie wäre nur möglich entweder bei Einsatz mehrerer Frequenzen oder bei Intensitäten der Größenordnung eines Gasdurchbruchs, bei denen die Verstimmung durch nichtlineare Prozesse überwunden wird.

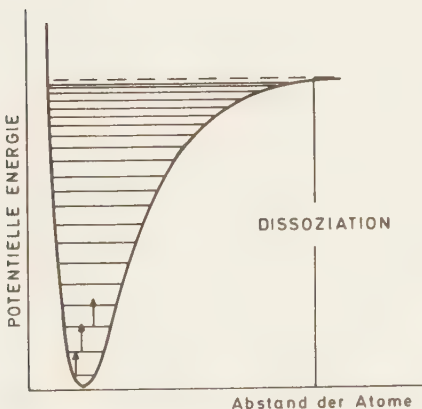


Abb. 11:

Schwingungsenergieniveaus eines zweiatomigen Moleküls und die Frequenz eines Lasers in Resonanz mit dem ersten $n=0 \rightarrow n=1$ Schwingungsübergang

Bei mehratomigen Molekülen sieht es aber anders aus. Viele solcher Moleküle sind durch stoßfreie Vielphotonenabsorption dissoziiert worden. Der Unterschied zwischen diesem Prozeß und der Absorption eines zwei-

atomigen Moleküls ist noch nicht ganz geklärt. Wäre dafür ein nichtlinearer Absorptionsprozeß verantwortlich, würde man Intensitäten der Größenordnung $10^9 - 10^{10} \text{ W/cm}^2$ benötigen. Dagegen sind drei Größenordnungen kleiner Intensitäten schon genug, um mehratomige Moleküle zu dissoziieren. Viele Veröffentlichungen haben verschiedene Erklärungen dazu vorgeschlagen, die nicht ganz übereinstimmen. Wie die Veröffentlichung /72/ darlegt, ist keines dieser Modelle umfassend genug, um die Einzelheiten des Prozesses in verschiedenen Molekülen erklären zu können. Vielen gemeinsam ist aber die Gewohnheit, den Prozeß in drei Stufen einzuteilen. Die erste Stufe ist der Bereich des Schwingungsspektrums, wo die spektralen Eigenschaften der Moleküle am besten bekannt sind, und wo Hochauflösungsspektroskopie normalerweise durchgeführt wird. In dieser Stufe werden diskrete Niveaus einer Schwingungsmoden durch kohärente Übergänge in Resonanz mit der Laserfrequenz angeregt. Mit zunehmendem Anregungsgrad werden die Entfernungen zwischen Niveaus wegen Anharmonizität, Aufspaltungen und Kombinationen der entarteten Schwingungsmoden allmählich kleiner und in der zweiten Stufe beginnt die angeregte Schwingung, sich wegen Fermi-Resonanz mit den anderen Niveaus zu mischen. In diesem Bereich sind spektroskopische Eigenschaften nicht gut bekannt, und nur wenige Zuordnungen sind durchgeführt worden. Es wird allgemein angenommen, daß dieser Bereich in gewissem Maß aus quasikontinuierlichen Strukturen besteht. Ab welchem Anregungsgrad und in welchem Ausmaß aber diese Komplexe von Niveaus als ein Quasikontinuum im Sinn von Bloembergen und Yablonovitch /73/ (d.h. durch nichtkohärente Wechselwirkungen, Fermische goldene Regel und kinetische Gleichungen beschrieben) betrachtet werden können, ist in der gegenwärtigen Literatur immer noch ein sehr umstrittener Punkt. Die letzte Stufe ist der Bereich des wahren Kontinuums über der Dissoziationsschwelle, wo fortgesetzte Schwingungsanregung mit Dissoziation konkurriert. Diese Stufe wird durch die herkömmlichen Theorien der monomolekularen Dissoziation /74, 75/ gut beschrieben.

3.2 Strukturen innerhalb des Quasikontinuums

Die ersten sowie die letzten Schritte des Viel-photonenabsorptionsprozesses können also durch etablierte, gut bekannte Theorien befriedigend beschrieben werden. Die bisher veröffentlichten Versuche, die dazwischen liegenden Schritte zu erklären, können in groben Zügen in zwei gegensätzliche Ansätze klassifiziert werden /76/.

Im ersten /73, 77, 78/ werden die Eigenschaften der Niveaus im Bereich der Dissoziationsschwelle zum Bereich der unteren Niveaus extrapoliert. Es wird dann angenommen, daß sich die Energie zwischen den Moden statistisch verteilt, daß die Spektren ungefähr nach dem dritten Absorptionsschritt (im Falle von 1000 cm^{-1} -Quanten) breit und beinahe kontinuierlich sind, und daß spektrale Einzelheiten wie anharmonische Verschiebungen über diesem Schritt vernachlässigt werden können.

In dem anderen Ansatz /72, 79, 80/ werden spektroskopische Eigenschaften der niedrigen Zustände zu höheren Energien extrapoliert. Die Spektren werden von den wenigen Übergängen dominiert, die Oszillatorstärke tragen und die den Übergängen in den ersten Schritten entsprechen, obwohl die Obertonniveaus dieser Schwingungen wegen Aufspaltung von Entartungen komplexe Strukturen bilden. Beimischung von (in erster Näherung infrarotinaktiven) Übergängen andererseits ändern die Spektren nur unmerklich (kleine "quasikontinuierliche" Verbreiterung jedes Übergangs in der komplexen Struktur der erlaubten Übergänge). Trotzdem kann sie zum Verlust der Modenselektivität führen. In /72/ werden möglicherweise dazu beitragende Mechanismen erörtert.

Die Grenzen für diese letzte Annäherungsweise wird allmählich zu höheren Niveaus verschoben in dem Maße, wie neue Erkenntnisse über die Spektren der angeregten Moleküle ans Licht kommen. Neue Veröffentlichungen versuchen Frequenzabhängigkeiten der Absorption durch das

sogenannte Quasikontinuum festzustellen /81-83/ und Zusammenhänge mit molekularen Eigenschaften zu finden /83-87/. Experimentelle Ergebnisse dieser Studien bestehen aus Absorptionsquerschnitten oder Dissoziationsquantenausbeuten als Funktionen verschiedener Parameter wie Laserfrequenz, Dauer der Pulse, Pulsenergiedichte (J/cm^2), Laserintensität (W/cm^2), Gasdruck usw. Eine Charakteristik der Experimente über Vielphotonenabsorption ist, daß es viele experimentelle Parameter gibt, die variiert werden können, aber normalerweise nicht voneinander unabhängig sind.

Der Vergleich des Absorptionsquerschnitts für verschiedene Laserlinienbreiten kann ein Anhaltspunkt für die direkte Entscheidung zwischen einer fast kontinuierlichen und einer strukturierten Form des Spektrums sein. Für SF_6 z.B. soll der typische Abstand zwischen den Komponenten eines Linienkomplexes der ν_3 Schwingungsmode bei $1 - 3 \text{ cm}^{-1}$ liegen /72/. Eine breitbandige Laserstrahlung, die einige Komponenten umfaßt, sollte also wirksamer als eine schmalere Linie absorbiert werden. Wenn es im Spektrum solche Lücken wirklich gibt, - und nur in diesem Fall - kann der Unterschied zwischen Schmal- und Breitbandabsorption beobachtet werden. Ein derartiges Experiment wurde durchgeführt /88-90/, indem die Pulslänge eines CO_2 -Lasers über einige Größenordnungen variiert wurde. Die entsprechenden Wechselwirkungsbreiten variierten dann (für den ersten Schritt gerechnet) zwischen einigen Bruchteilen von einem cm^{-1} und einigen zig cm^{-1} . Das Experiment /88-90/ zeigte, daß die kürzeren Pulse wirksamer absorbiert werden, und die Veröffentlichungen /72, 91/ führen diesen Unterschied auf die Bandbreiten und spektralen Lücken im Spektrum der angeregten Moleküle zurück, wie oben erklärt.

Ein Nachteil dieses Experiments /88-90/ besteht darin, daß die Breiten der Wechselwirkung nicht fest sind. Sie ändern sich während des Pulses und als Funktion der Pulsenergie (für eine bestimmte Pulslänge). Sie hängen auch von dem betreffenden Übergang ab und variieren deshalb von Schritt zu Schritt in der Anregungsleiter. Außerdem kann der Einfluß anderer intensitätsempfindlicher Mechanismen wie direkte Zweiphotonenabsorption nicht vernachlässigt werden.

Diese Schwierigkeiten werden in unserem Experiment beseitigt. Unser CO_2 -Laser emittiert breitbandig bei 20 bar, und schmalbandig bei 4 bar. Die Pulslängen sind gleich. Die beobachteten Unterschiede in der Absorption von SF_6 bei 944 cm^{-1} sind qualitativ dieselben wie im Experiment mit verschiedenen Pulslängen /90/. Unser Experiment bestätigt also die Vermutungen von /72, 91/ über die spektralen Strukturen des hochangeregten SF_6 .

3.3 Beschreibung des Experiments

Die Experimente wurden beim Messen der Transmission einer Zelle mit SF_6 im Bereich der 10P20-Linie eines CO_2 -Lasers durchgeführt. Die Zelle war 1 m lang und die Dichte des SF_6 war in allen Fällen $6.5 \times 10^{15} \text{ Molekül/cm}^3$. Die Rotationsrelaxationszeit für SF_6 kann durch den Ausdruck /92, 93/

$$t_R = 1 \times 10^{10} (N \cdot \sqrt{T})^{-1} \text{ s} \quad (3.3.1)$$

gegeben werden, wobei N die Dichte in cm^{-3} und T die Temperatur sind. Mit dem benutzten Wert von N ist diese Zeit also etwa 100 ns bei Zimmertemperatur. Die Pulsdauer unseres Lasers ist andererseits etwa 50 ns, so daß man den Absorptionsprozeß als fast stoßfrei annehmen konnte.

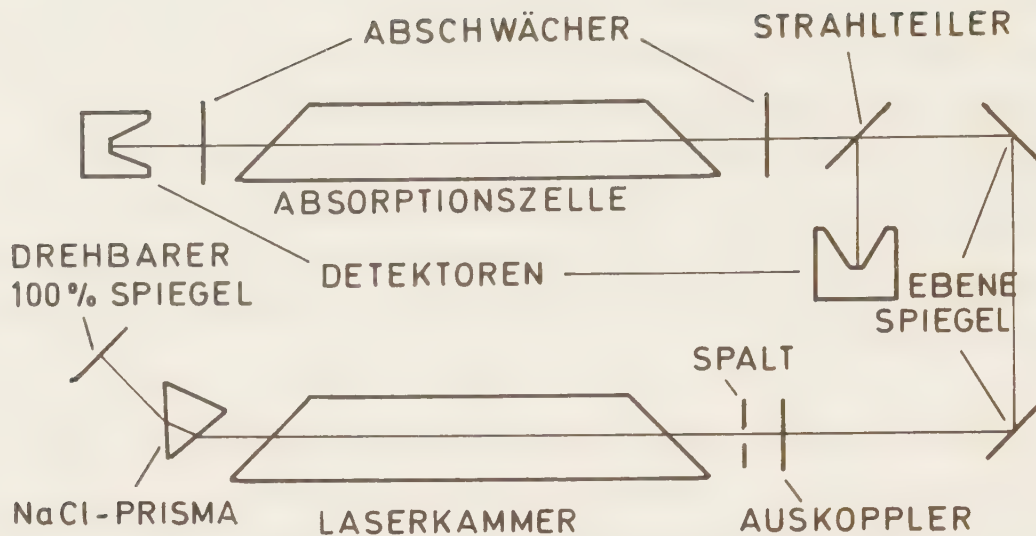


Abb. 12: Experimenteller Aufbau zur Messung der Vielphotonenabsorption von SF_6

Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 12 wiedergegeben. Der benutzte Laser ist im vorigen Kapitel ausführlich beschrieben. Er wurde während der Experimente mit schmaler Linie bei 4 bar betrieben und durch ein 75 mm breites, mit 135 Linien/mm Beugungsgitter und einem im Resonator enthaltenen Teleskop (wie in Abb. 9e) zum Maximum der 10P20-Linie abgestimmt. Während der Messungen mit breiter Bande wurde der Laser bei 20 bar betrieben und durch ein NaCl-Prisma (wie in Abb. 9c) in einen etwa 1.5 cm^{-1} breiten Bereich um die gleiche Frequenz herum abgestimmt. In diesem Fall bestand die Emission aus einer Frequenzenstruktur, die - wie im Abschnitt 2.8 schon erwähnt wurde - dem Fabry-Perot-Effekt des Auskopplers zuzuschreiben ist und deren Spektrum in Abb. 13 gezeigt ist. Die Pulse dauerten immer etwa 50 ns, hatten keinen Schwanz und keine Modulation innerhalb einer 10 ns Zeitauflösung. Abbildung 14 zeigt ihr räumliches Profil, das beinahe gaußförmig ist, mit einer Breite ($2w_0$) von ungefähr 8 mm.

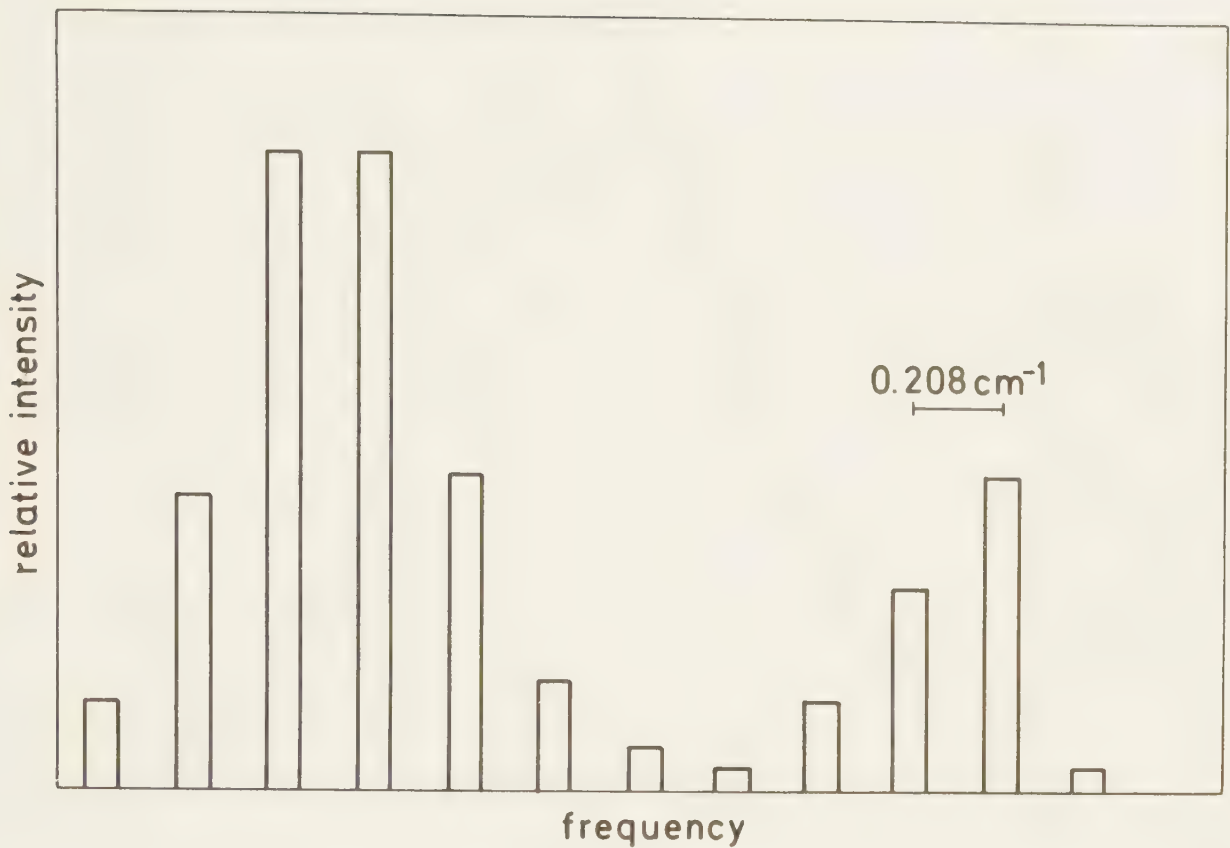


Abb. 13: Emissionsspektrum des Lasers. Die 10P20-Linie des CO_2 liegt zwischen den beiden Maxima. Ihre genaue Position wurde nicht gemessen. Dieses Spektrum wurde mit Thermopapier in der Brennebene des im vorigen Kapitel beschriebenen Spektrographs gemessen. Der Laserstrahl wurde bei einigen Schüssen durch Strahlteiler mit verschiedenen Durchlässigkeiten T abgeschwächt. Dann wurde T^{-1} senkrecht für die Frequenzen mit gleichen Helligkeiten aufgenommen.

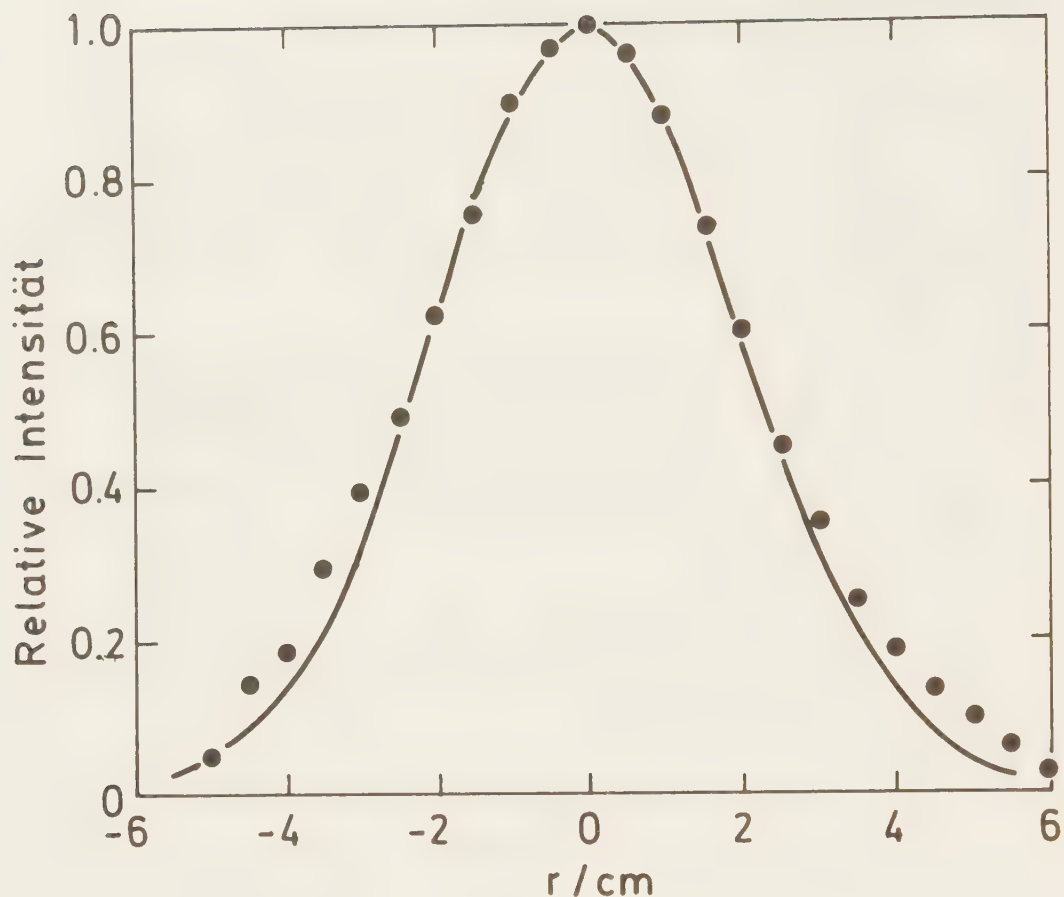


Abb. 14: Räumliches Profil des Laserstrahls. Die durchgezogene Linie ist ein Gaußsches, 8 mm breites Profil.

Um die Absorption der Zelle zu bekommen, wurde die Pulsenergie durch geeichte Detektoren vor und hinter ihr gemessen. Vor und gleich nach jeder Messungsreihe wurden die Detektoren wieder mit der leeren Zelle geeicht. Die verschiedenen Werte der Energiedichte wurden bekommen, indem man verschiedene CaF_2 -Scheiben unmittelbar vor und hinter der Zelle als Abschwächern benutzte, so daß immer dieselben Meßbereiche der Detektoren benutzt worden sind. Der vor der Zelle benutzte NaCl-Strahlteiler war 15 mm dick. Durch diese große Dicke wurden Meßunsicherheiten wegen temperaturabhängigen optischen Inter-

ferenzen vermieden. Die Messungen wurden mehrere Male wiederholt und als Ergebnisse wurden die durchschnittlichen Werte genommen.

Dissoziation wurde in einer 100 mm langen, mit einem 6 mm Durchmesser und mit NaCl-Fenstern versehenen Kupferzelle gemessen. Die Zelle wurde durch einen 2 m entfernten, R=3m-Konkavspiegel bestrahlt, und danach warf ein ebener Spiegel das Laserbündel in die Zelle zurück. Der SF_6 -Abbau wurde mehrere Male nach 10 bis 100 Laserschüssen in einem Infrarotspektrometer gemessen.

3.4 Auswertungsmethode

Die gemessene Größe war in allen Fällen die Durchlässigkeit der Zelle, T_M , die als Verhältnis zwischen der durchgelassenen und der einfallenden Laserpulsenergie erklärt ist.

Die Energieverteilung quer zum Laserstrahl wurde als gaußförmig angenommen:

$$\phi = \phi_0 \exp \left(- \frac{2r^2}{w_0^2} \right) \quad (3.4.1)$$

wobei ϕ_0 die Energiedichte in der Mitte ($r = 0$) ist und w_0 der Wert des Radius ist, für den $\phi = \phi_0 e^{-2}$. In unserem Fall war er 4 mm. Für die einfallende Energiedichte wurde das Maximum der Gaußschen Verteilung ϕ_0 genommen:

$$\phi_0 = \frac{E_{\text{in}}}{S_{\text{eff}}} = 2 E_{\text{in}} / \pi w_0^2 \quad (3.4.2)$$

wobei E_{in} die gesamte einfallende Pulsenergie und $S_{\text{eff}} = \pi w_0^2 / 2$ die wirksame Querschnittsfläche des Strahles sind.

Die in den Rechnungen benutzten Werte der Energiedichte sind ihrerseits Durchschnitte längs der Zelle:

$$\bar{\phi} = L^{-1} \int_0^L \phi(\ell) d\ell = \phi_0 L^{-1} \int_0^L \exp[-\sigma(\ell)NL] d\ell \approx -\phi_0 (1-T_M) / \ln T_M \quad (3.4.3)$$

wobei L die Länge der Zelle und $\sigma(\ell)$ der örtliche Absorptionsquerschnitt sind.

Die gemessenen Werte von T_M sind andererseits Durchschnitte quer durch den Strahl. Die Durchlässigkeiten, die tatsächlich den durch die Gl. (3.4.3) definierten Energiedichten entsprechen, werden nach der Entfaltung von der Gaußschen Einhüllenden /94/ durch

$$T = T_M \left(1 + \frac{d \ln T_M}{d \ln \bar{\phi}} \right) \quad (3.4.4)$$

gegeben. Der Gesamtquerschnitt wird wie üblich durch

$$\bar{\sigma} = - \ln T / NL \quad (3.4.5)$$

erklärt. Die durchschnittliche Zahl der pro Molekül absorbierten Photonen kann entweder durch

$$q = \bar{\sigma} \phi / hf \quad (3.4.6)$$

oder durch

$$q = \Delta E / SLNhf = (1-T) \bar{\phi} / NLhf \quad (3.4.7)$$

berechnet werden, wobei hf die Quantenenergie und ΔE die absorbierte Energie sind. Die Gl. (3.4.6) ist örtlich definiert, während (3.4.7) Durchschnitte längs der Zelle enthält. Für kleine Absorptionen stimmen sie überein.

Der differentielle Querschnitt σ , durch

$$\sigma = hf \frac{dq}{d\phi} \quad (3.4.8)$$

erklärt, stellt den Absorptionsquerschnitt eines Moleküls dar, das schon q Photonen absorbiert hat. Diese Größe kann auch als

$$\sigma = hf \frac{q}{\phi} \frac{d \ln q}{d \ln \phi} \quad (3.4.9)$$

ausgedrückt werden. Diese Gleichung ist zum Auswerten günstiger als (3.4.8), da der logarithmische Differentialquotient sich nur langsam ändert.

Zuerst wurde also $q(\phi)$ über Gl. (3.4.7) berechnet und von der entstandenen Abb. 15 wurde der Querschnitt σ mit Hilfe der Gl. (3.4.9) ausgewertet. In Abb. 16 wird dann σ als Funktion der durchschnittlichen Zahl der absorbierten Quanten q gezeigt, deren Werte gleichfalls von Abb. 15 entnommen wurden.

3.5 Ergebnisse

Die pro Molekül durchschnittlich absorbierte Photonenzahl ist in Abb. 15 für schmal- und breitbandige Anregung, bei Zimmertemperatur und bei 140 K gezeigt. Hier sieht man, daß die Frequenzverbreiterung eine Zunahme der Absorption verursacht, die bei 0.1 J/cm^2 einem Faktor zwischen 3 und 5, bei 1 J/cm^2 einem Faktor 2 entspricht. Dieselbe Abbildung zeigt noch (gestrichelte Linien) die von Kwok u.a. /90/ mit 30 ps-Pulsen bekommenen Ergebnisse, sowie diejenigen von Black /88, 89/, die in derselben Veröffentlichung /90/ als Referenz benutzt worden sind.

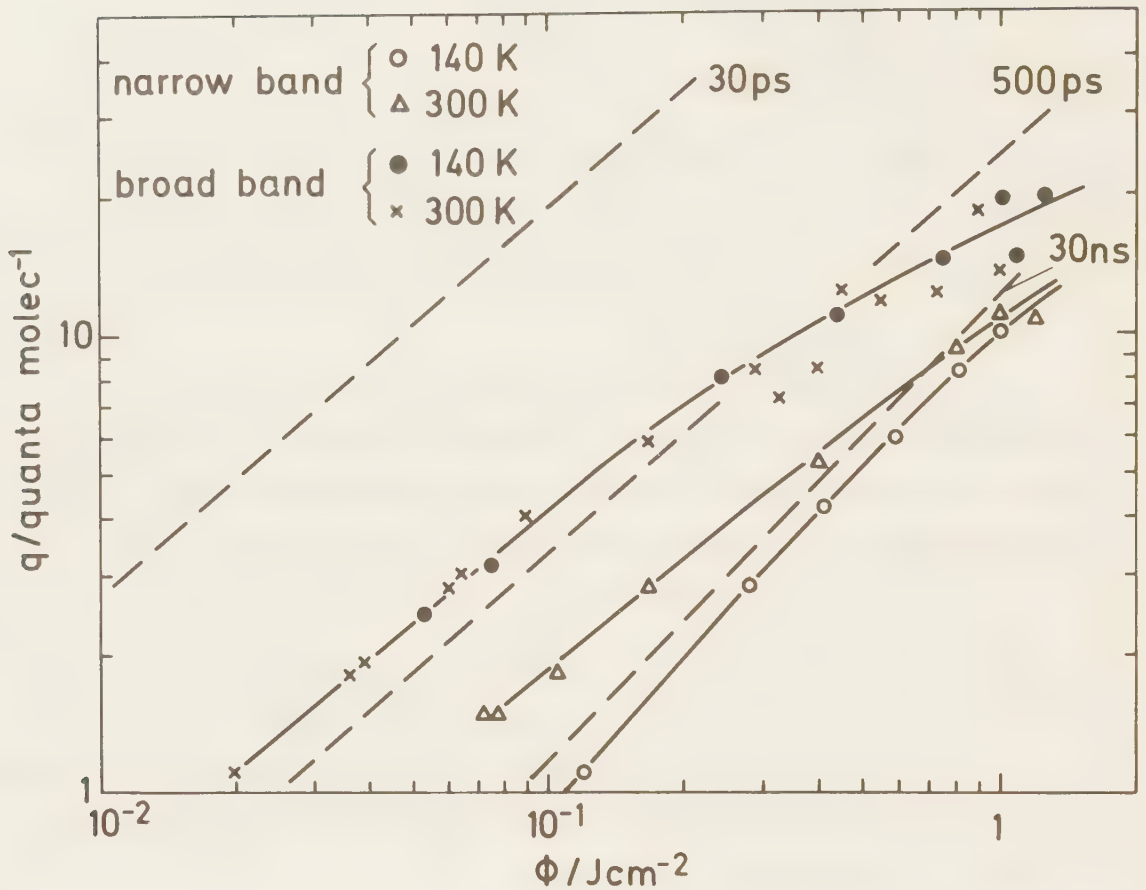


Abb. 15: Absorbierte Energie pro Molekül als Funktion der einfallenden Energiedichte. Die gestrichelten Linien wurden von /90/ entnommen.

Unsere Befunde bei 50 ns und schmaler Bandbreite liegen in der Nähe der 30 ns-Daten von /88-90/. Unsere breitbandigen Absorptionen liegen andererseits dicht bei den mit 500 ps gemessenen /90/. Bemerkenswert ist auch die Beobachtung, daß die Temperatur keinen Effekt auf die breitbandige Absorption hat, im Gegensatz zu dem Fall schmaler Bandbreite.

Gleichartige Beobachtungen können in Abb. 16 gemacht werden. Hierbei werden die differentiellen Absorptionsquerschnitte σ als Funktion des durchschnittlichen Anregungsniveaus gezeigt.

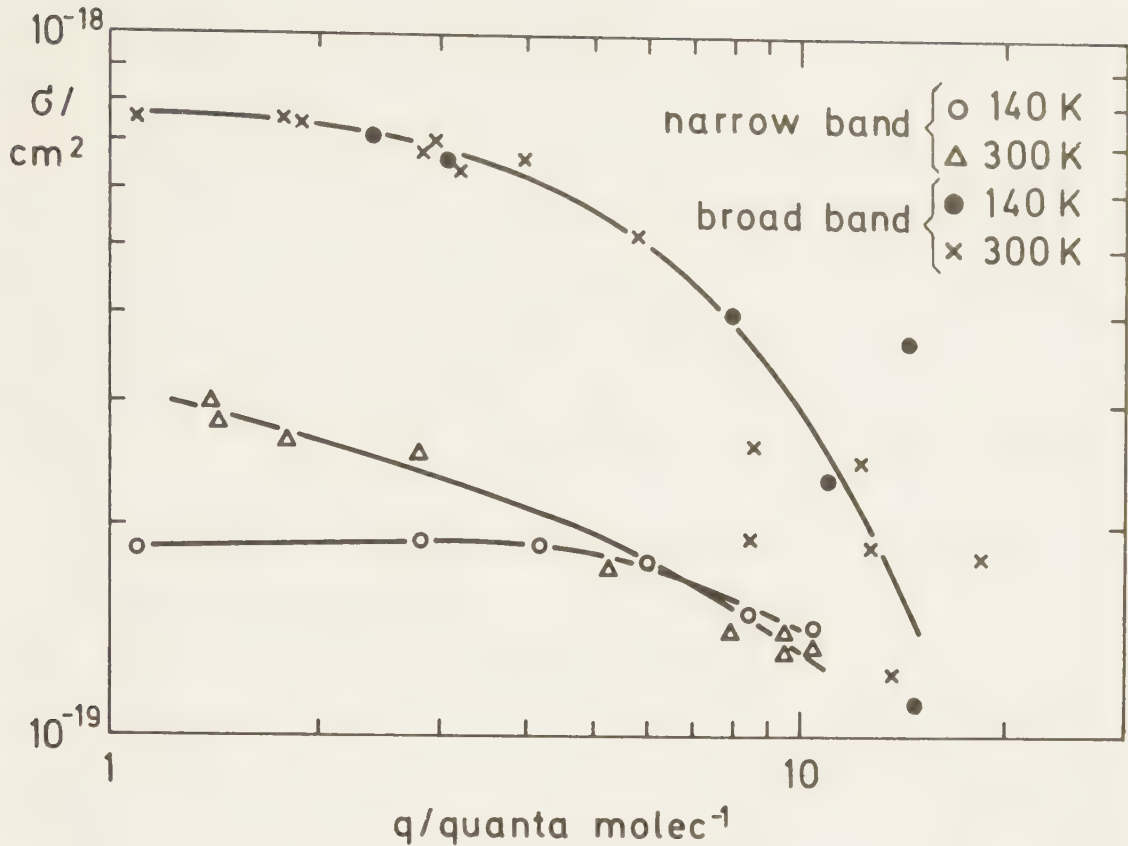


Abb. 16: Differentieller Absorptionsquerschnitt als Funktion der durchschnittlich absorbierten Energien.

3.6 Deutung

Die Abb. 15 zeigt, daß der Unterschied zwischen den Absorptionen für schmal- und breitbandige Strahlung und der Unterschied zwischen den Daten für 30 ns und 500 ps von /90/ sehr ähnlich sind. Wenn man mit dem Wert von 1.4×10^{-30} C.m für das Dipolmoment des ersten Übergangs rechnet /95/, ist die Wechselwirkungsbreite (Intensitätsverbreiterung $2\mu E/hc$) für die 500 ps-Pulse etwa 5 cm^{-1}

bei einer Energiedichte von 0.1 J/cm^2 und etwa 15 cm^{-1} bei 1 J/cm^2 . Diese Werte sind natürlich auch von den Dipolmomenten der jeweiligen Übergänge abhängig. Wenn man aber diese Ungewißheit, sowie die zwei Schwerpunkte unseres Laseremissionsspektrums in Betracht zieht, ist die Übereinstimmung gut (die Intensitätsverbreiterung verwischt die Feinstruktur der Laseremission). Als Schlußfolgerung kann man annehmen, daß der Pulslängeneffekt von /90/ eine Konsequenz der entsprechenden Bandbreiten ist. Man braucht dazu also weder Relaxation noch direkte Vielphotonenabsorption heranzuziehen.

Bei beträchtlich höheren Energiedichten sollte der Unterschied zwischen Schmal- und Breitbandigkeit verschwinden, weil dann die Intensität allein genügende Bandbreiten schafft. Da unsere Absorptionsapparatur nicht viel über 1 J/cm^2 zuließ, haben wir statt dessen die Dissoziationswahrscheinlichkeit P_d bei 8 J/cm^2 gemessen. Der gefundene Wert von $P_d = 0.10$ war derselbe für kleine und große Bandbreite. Die berechnete Intensitätsverbreiterung lag dann bei 5 cm^{-1} .

Der Bandbreiteneffekt kann auf zwei Arten erklärt werden: Einerseits ist wegen der Verteilung der Besetzung über die Rotations- und Schwingungszustände nur ein Teil der Moleküle in der Lage, mit der Laserfrequenz zu wechselwirken. Dieser Anteil hängt von der Linienbreite ab, die Intensitätsverbreiterung eingeschlossen.

Der zweite Mechanismus rechnet spektrale Strukturen in den höheren Schritten ein. Ein Laser, dessen Bandbreite schmaler ist als die typischen Lücken dieser Strukturen, wird früher oder später einen Engpaß antreffen. Die Bandbreiten, bei denen diese Engpässe verschwinden, geben einen Hinweis über die Breiten der spektralen Lücken.

Die Zunahme der Absorption für kürzere Pulse /90/ wurde diesem zweiten Effekt zugeschrieben /72, 91/. Hauptbeweis dafür war, daß bei einem durchschnittlichen Anregungsniveau von etwa 35 Photonen/Molekül die ersten Absorptionsschritte keine wichtige Rolle mehr spielen können. Obwohl unsere Befunde nicht viel über 15 Quanten/Molekül reichen, kann man auch hier dasselbe Argument benutzen. Dieses wird klarer, wenn man Abb. 16 betrachtet, die den differentiellen Absorptionsquerschnitt σ als Funktion des Anregungsgrads q zeigt. Für $q = 15$ kann die Wahrscheinlichkeit der Absorption eines weiteren Photons nicht viel von den ersten Schritten abhängen, da nur wenige Moleküle im Grundzustand übrig geblieben sind.

Der Temperatureffekt bestätigt diese Erklärung. In Abb. 15 sieht man, daß die schmalbandige Absorption bei Zimmertemperatur größer ist als bei 140 K. Dieser Unterschied ist auf den Einfluß heißer Banden zurückzuführen, die in thermisch besetzten Schwingungszuständen anfangen. (Die Laseremission lag auf der Niedrigfrequenzseite des Absorptionsspektrums.) Diese zusätzlichen Schwingungsquanten lassen neue Aufspaltungen entstehen /72/, die ihrerseits wichtig zum Überwinden der Engpässe sind. Wenn aber diese Engpässe durch einen anderen Mechanismus (z.B. größere Bandbreiten) überwunden werden können, wird der Temperatureffekt verschwinden. Genau das zeigt Abb. 15.

3.7 Schlußfolgerung

Die Autoren der Veröffentlichungen /72, 91/ haben für die Erklärung der Messungen mit kurzen Pulsen /88-90/ die Existenz spektraler Strukturen (typische Breiten etwa 1 cm^{-1}) auch in höheren Absorptionsschritten vorausgesetzt. Das beschriebene Experiment bestätigt diese

Erklärung. Die Ergebnisse bei hohen Anregungsgraden weisen darauf hin, daß solche Strukturen wenigstens bis zum 10. Absorptionsschritt überleben. Obwohl die entsprechenden spektralen Kontraste zur Zeit nicht bekannt sind, scheint die Bezeichnung "Quasikontinuum" für ein solches Spektrum nicht geeignet. Man kann natürlich wie in /72, 76/ von "spektralen Strukturen in einem Quasikontinuum von Zuständen" sprechen.

Es ist auch möglich, daß es noch schmalere Strukturen gibt, die wegen unvermeidlicher Intensitätsverbreiterungen nicht bewiesen werden können. Es scheint schließlich bemerkenswert, daß in vielen Veröffentlichungen über Infrarotvielphtonenabsorption von SF_6 /89, 96-99/ und anderen Molekülen /100/ die Laserlinienbreite in die Gegenrichtung geändert wurde. In diesen Fällen wurde der Laser mit einer einzigen Längsmode betrieben, deren Breite etwa 10^{-3} cm^{-1} ist, statt der etwa 0.03 cm^{-1} breiten wirksamen Emission eines normalen Atmosphärendruck-Lasers. Obwohl die Intensitätsverbreiterung größer ist als beide Bandbreiten, wurden im Fall von Einzelmoden immer niedrigere Absorptionen beobachtet als bei mehreren Längsmoden. Die Einzelmoden-Emission enthält aber keine Zeitstruktur und hat deshalb für dieselben Pulsenergien kleinere Intensitätsverbreiterungen.

4. Spektroskopie im Resonator mit dem breitbandigen CO₂-Laser

4.1 Einleitung

Die spektroskopische Methode, bei der die Absorptionsküvette innerhalb eines Laserresonators bleibt, wurde anfangs in Zusammenhang mit Neodym-/101, 102/ und Farbstofflasern /103-106/ entwickelt. Die Anwendung von Beugungsgittern, Prismen und anderen optischen Elementen zur Abstimmung von Farbstofflasern ist so alt wie die Anwendung dieser Laser selbst /107/. Erst später wurden spektrale Lücken in breitbandiger Emission beobachtet /108/, die Interferenzeffekten von fast parallelen Oberflächen der Kopplungselemente oder auch sehr kleinen zufälligen Änderungen von Spiegelreflektivitäten bei bestimmten Wellenlängen zugeschrieben wurden. Die Beobachtung dieser Effekte wies darauf hin, daß jede hemmende Aktion in einer beliebigen Frequenz drastische Folgen in der Emission verursachen kann /103/. Das bietet also die Möglichkeit, kleine Mengen eines absorbierenden Gases innerhalb des Laserresonators nachzuweisen. Diese Methode hat sich tatsächlich als viel empfindlicher erwiesen als die herkömmliche fotografische Dichtemessung.

Schon im Jahre 1970 haben Pakhomycheva u.a. /101/ mit diesem Prinzip die Anwesenheit schwach absorbierender Gase im Resonator eines Nd-Glas-Lasers nachweisen können. Dieselbe Gruppe hat die Möglichkeit erwähnt, Farbstoffe als Lasermedium anzuwenden, um den Spektralbereich zu erweitern. Kurz danach wurde diese Möglichkeit von Peterson u.a. /103/ durchgeführt. Weitere Veröffentlichungen /104-106/ stellten fest, daß diese Art von Spektroskopie äußerst schwache Absorptionen nachzuweisen ermöglicht. Sie ist besonders für Niederdruckgase geeignet. Lit. /109/ ist ein umfassender Überblick der weiteren Entwicklung dieser Technik und ihrer vielfältigen Anwendungen.

Breitbandige Absorptionsspektroskopie im Laserresonator zeigt gegenüber der konventionellen Absorptionsspektroskopie und anderen laserspektroskopischen Methoden wichtige Vorteile. Zuerst kann die Nachweisempfindlichkeit für kleine Absorptionen sehr erhöht werden. Diese Steigerung ist im wesentlichen drei Faktoren zuzuschreiben /110/:

- 1) Mehrdurchgangs-Effekt: Im Durchschnitt kann jedes Photon den Laserresonator nur dann verlassen, wenn es die Absorptionszelle mehrere Male durchquert hat. Die Wirkung dieses Faktors kann durch ein modifiziertes Beersches Gesetz berechnet werden, in dem die Zellenlänge durch eine wirksame Weglänge ersetzt wird. Diese wirksame Weglänge ist die Länge der Absorptionszelle ℓ multipliziert mit der Zahl der Durchgänge des Laserstrahls durch die Zelle während der Einschwingzeit t_s , d.h.

$$\ell_{\text{eff}} = \frac{c t_s}{L} \ell \quad (4.1.1)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit und L die Länge des Resonators sind (siehe Gl. 4.4.7).

- 2) Die Schwellennatur des Laseremissionsprozesses: Wenn der Laser in der Nähe der Schwelle betrieben wird, kann jede kleine Änderung der Verluste eine große Wirkung auf die stimulierte Emission haben. Bei Dauerstrichlasern, die immer an der Schwelle arbeiten, kann dieser Faktor leicht zur Löschung der benachteiligten Frequenzen führen.
- 3) Modenkonkurrenz: Wenn die spektrale Verbreiterung der Verstärkung homogen ist und wenn die Emission bei einer bestimmten Frequenz behindert ist, dann kann das Lasermedium auf eine andere Frequenz

ausweichen. Das wirkt auf die benachteiligten Frequenzen wie eine negative Rückkopplung und steigert den Kontrast im Emissionsspektrum. Dieses ist für die hohen Empfindlichkeiten bei langen Pulsen und bei Dauerstrichlasern ein entscheidender Faktor.

Eine vollständige, allgemein angenommene theoretische Beschreibung für die Absorption im Laserresonator gibt es noch nicht. Die Veröffentlichung /11/ gibt eine klare Darstellung des aktuellen Standes der Forschung in diesem Gebiet. Vor allem stimmen die bisher vorgeschlagenen Modelle /111-117/ über die Einzelheiten der hohen Empfindlichkeiten bei langen Pulsen und Dauerstrichlasern nicht überein. Für kurze Pulse aber zeigt ein einfaches Ratengleichungsmodell /112/ mit experimentellen Ergebnissen eine gute Übereinstimmung.

Mit einer breiten Emissionsbande kann man einen breiten Spektralbereich gleichzeitig in einer einzigen Aufnahme bekommen. Damit vermeidet man die großen Fluktuationen, die häufig auftreten, wenn man schmalbandig Wellenlänge nach Wellenlänge mißt. Die große Helligkeit der Laseremission bietet noch die Möglichkeit, hochauflösende Spektrographen zu benutzen. Die Tatsache, daß die Empfindlichkeit bei kurzen Pulsen nicht so groß ist wie bei langen Pulsen, wird durch die Tatsache ausgeglichen, daß kurze Pulse bessere quantitative Messungen erlauben /110/, sowie durch die Vorteile der damit verknüpften breiten Banden.

Obwohl Spektroskopie im Resonator schon sehr oft in Verbindung mit Farbstoff- /118/ und Nd-Lasern /119/ benutzt worden ist, wurde diese Technik mit anderen Lasern, so weit wir es wissen /120-122/, nur schmalbandig, d.h. Punkt für Punkt angewendet. In dem hier beschriebenen Experiment wird die Verwendbarkeit dieser Methode zum ersten Mal für einen breitbandigen Hochdruck-CO₂-Laser vorgeführt.

4.2 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 17 gezeigt. Eine 41 cm lange, mit NaCl Brewsterfenstern versehene Absorptionszelle wurde im Resonator des CO_2 -Lasers angeordnet, der mit 20 bar Druck betrieben wurde. Der Resonator war 2 m lang und bestand aus einem goldbeschichteten Kupferspiegel mit 10 m Krümmungsradius und einem flachen, 52 % reflektierenden Ge-Auskoppler. Der Auskoppler hatte einen Winkel von 26 mrad zwischen seinen Oberflächen, zur Vermeidung von Interferenzstrukturen (siehe Abb. 9a). Während der Experimente mit CO_2 in der Absorptionszelle wurde kein Abstimmungselement benutzt. Das Emissions-

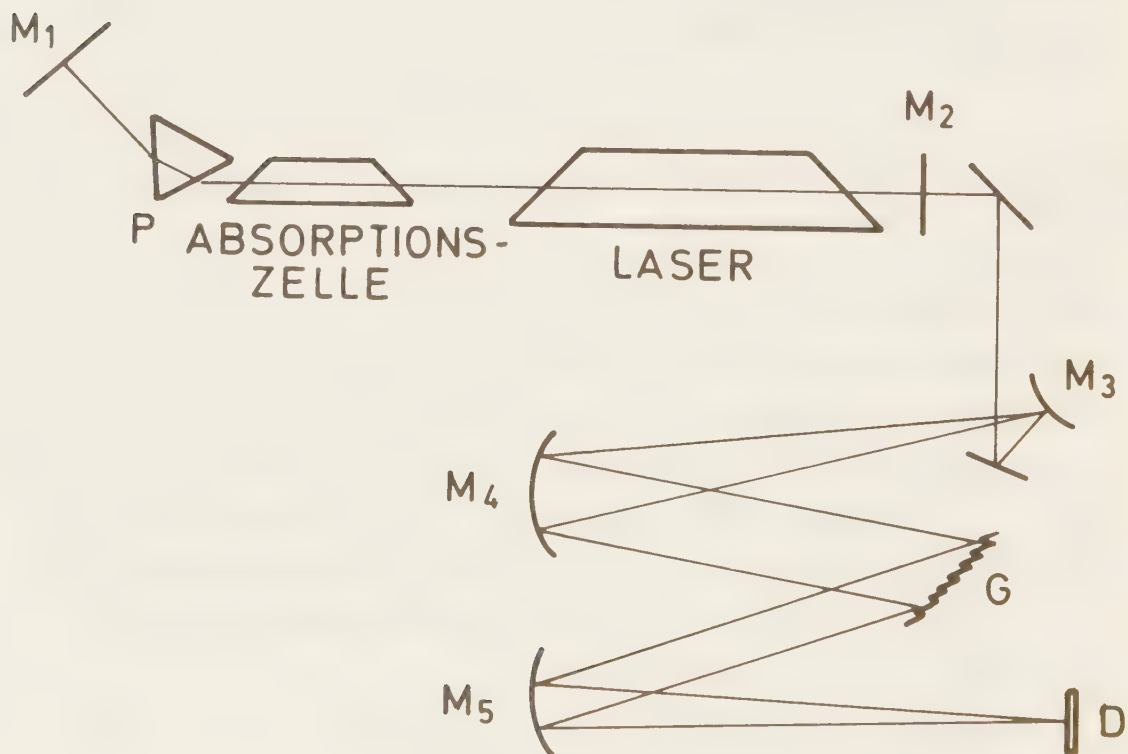


Abb. 17: Experimenteller Aufbau für Spektroskopie im Resonator. M_1 = Goldspiegel mit Krümmungsradius 10 m; M_2 = Auskoppler mit 26 mrad. Keilwinkel; M_3 , M_4 = Teleskop; G = Beugungsgitter; M_5 = Konkavspiegel mit Krümmungsradius 5 m; D = Zeilendetektor.

spektrum war in diesem Fall etwa 3 cm^{-1} breit um die $10R16$ -Linie des Absorptionsspektrums des CO_2 herum. Sonst wurde der Laser durch ein NaCl -Prisma abgestimmt und die Emissionsbreite war dann ungefähr 1.5 cm^{-1} . Die Spektren wurden durch den vorher beschriebenen Spektrographen analysiert und von einem Zeilendetektor auf einen Oszillographen oder einen Schreiber aufgenommen. Der Spektrograph hatte eine theoretische Auflösung von $.05 \text{ cm}^{-1}$ und diese Auflösung wurde durch zweimalige Beugung am Gitter verdoppelt, wie in Abb. 18 gezeigt. Der Detektor (Spiricon IR-128-11) bestand aus einer Reihe von 128 nebeneinander liegenden, $85 \text{ }\mu\text{m}$ breiten und $100 \text{ }\mu\text{m}$ hohen pyroelektrischen Elementen. Ihre Ablesungen wurden zuerst digital gespeichert (Sears dioscope) und dann auf dem Oszillographen oder auf dem Schreiber dargestellt. Die Pulse dauerten 50 ns und ihre Energie wurde auf etwa 200 mJ begrenzt. Der Pumpentladungsstrom dauerte etwa 100 ns .

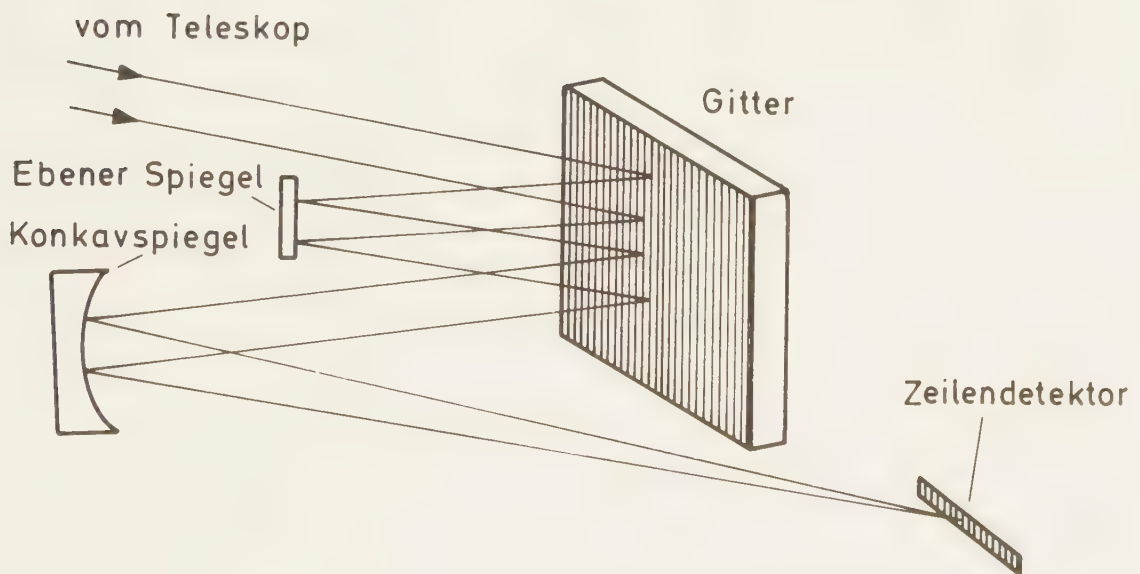


Abb. 18: Spektrograph mit verdoppelter Auflösung

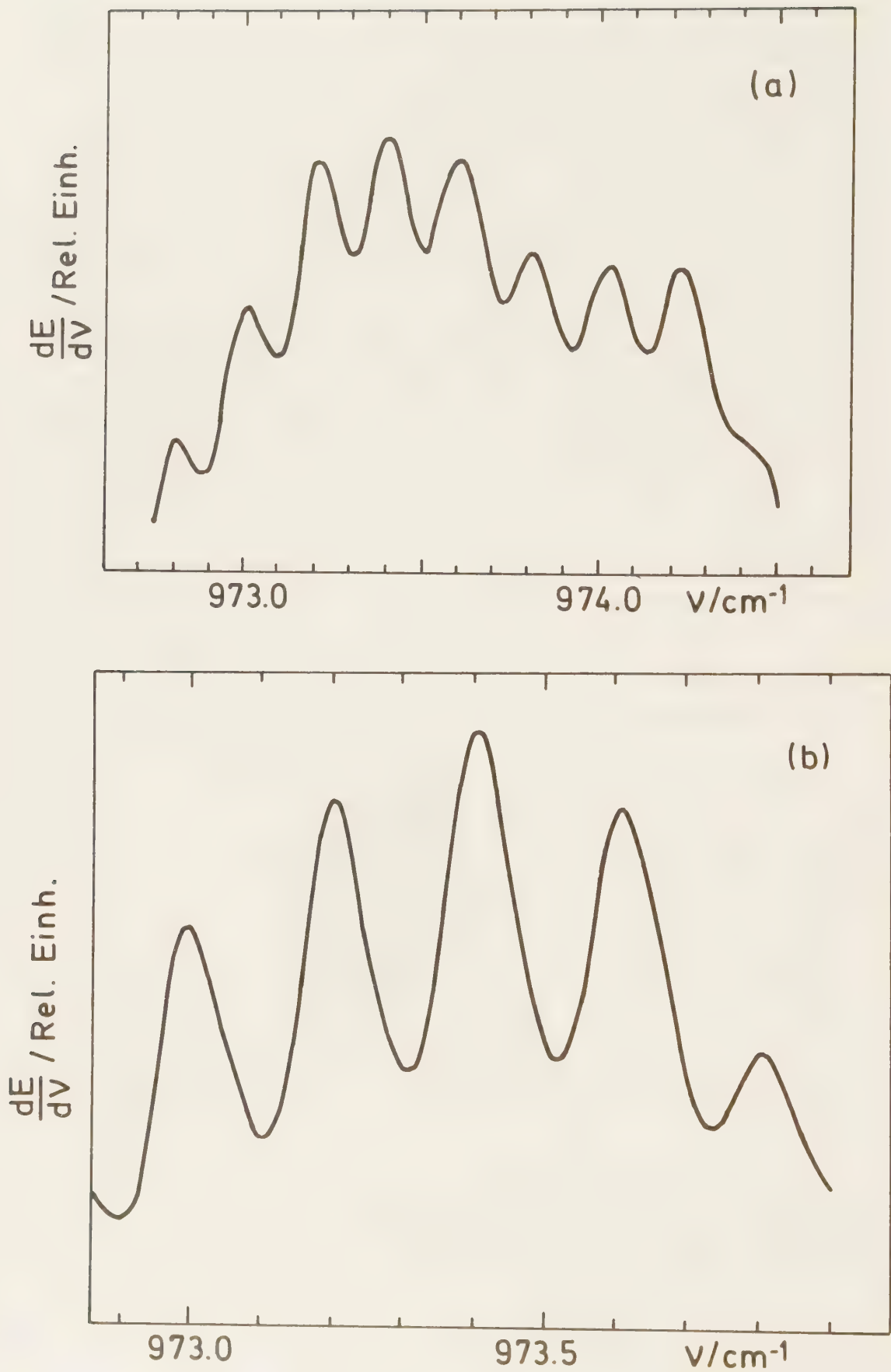


Abb. 19: Laseremissionsspektrum bei der 10R16-Linie des CO_2 mit einer 6.1 mm dicken Ge-Scheibe als Auskoppler.
a) Spektrum mit einfacher Auflösung des Spektrographen aufgenommen; b) Spektrum mit verdoppelter Auflösung (zweimalige Beugung am Gitter).

4.3 Ergebnisse

Die Abb. 19 zeigt das Laseremissionsspektrum in der Gegend der 10R16-Emissionslinie des Kohlendioxids mit leerer Absorptionszelle, wenn man eine 6.1 mm dicke Ge-Scheibe als Auskoppler benutzt. In (a) wurde das Spektrometer mit einfacher, in (b) mit verdoppelter (2 Durchgänge) Auflösung betrieben. Die Entfernung zwischen den Maxima des Emissionsspektrums beträgt etwa 0.2 cm^{-1} . Das entspricht dem freien Spektralbereich der Ge-Scheibe, wie schon in Kap. 2 erwähnt.

Dann wurde das Laseremissionsspektrum mit CO_2 in der Absorptionszelle im gleichen Bereich beobachtet. Dabei wurde aber ein Auskoppler mit Keilwinkel (26 mrad) benutzt, um den Fabry-Perot-Effekt zu vermeiden. Die Absorption der heißen Banden ist schon bei 40 mbar in der Zelle deutlich zu sehen, während mit der Zelle außerhalb des Resonators keine deutliche Absorptionsdelle im Laseremissionsspektrum bis zu 1 bar bemerkt wird. Abbildung 20 zeigt die Spektren für verschiedene Drücke. Jedes dieser Bilder stellt einen einzigen Laserpuls dar, wie er vom Zeilen-detektor auf den Oszillographen übertragen wurde. In anderen spektralen Bereichen wurde der Laser durch das NaCl-Prisma abgestimmt und ähnliche Ergebnisse wurden erhalten. Solche bekannten Absorptionslinien eignen sich für absolute Referenzfrequenzen in weiteren Spektren.

Mit Ammoniak in der Absorptionszelle wurde der Laser zum Bereich der 9R16 und 9R18 Emissionslinien des Kohlendioxides abgestimmt. In diesem Fall werden Absorptionslinien des NH_3 schon bei einem Bruchteil von einem mbar leicht nachgewiesen. Mit der Zelle außerhalb des Resonators ist auch hier keine deutliche Absorption zu sehen. Die Abb. 21 zeigt die Spektren mit der Zelle im Resonator bei verschiedenen NH_3 -Drücken (a, b, c, d), sowie die als

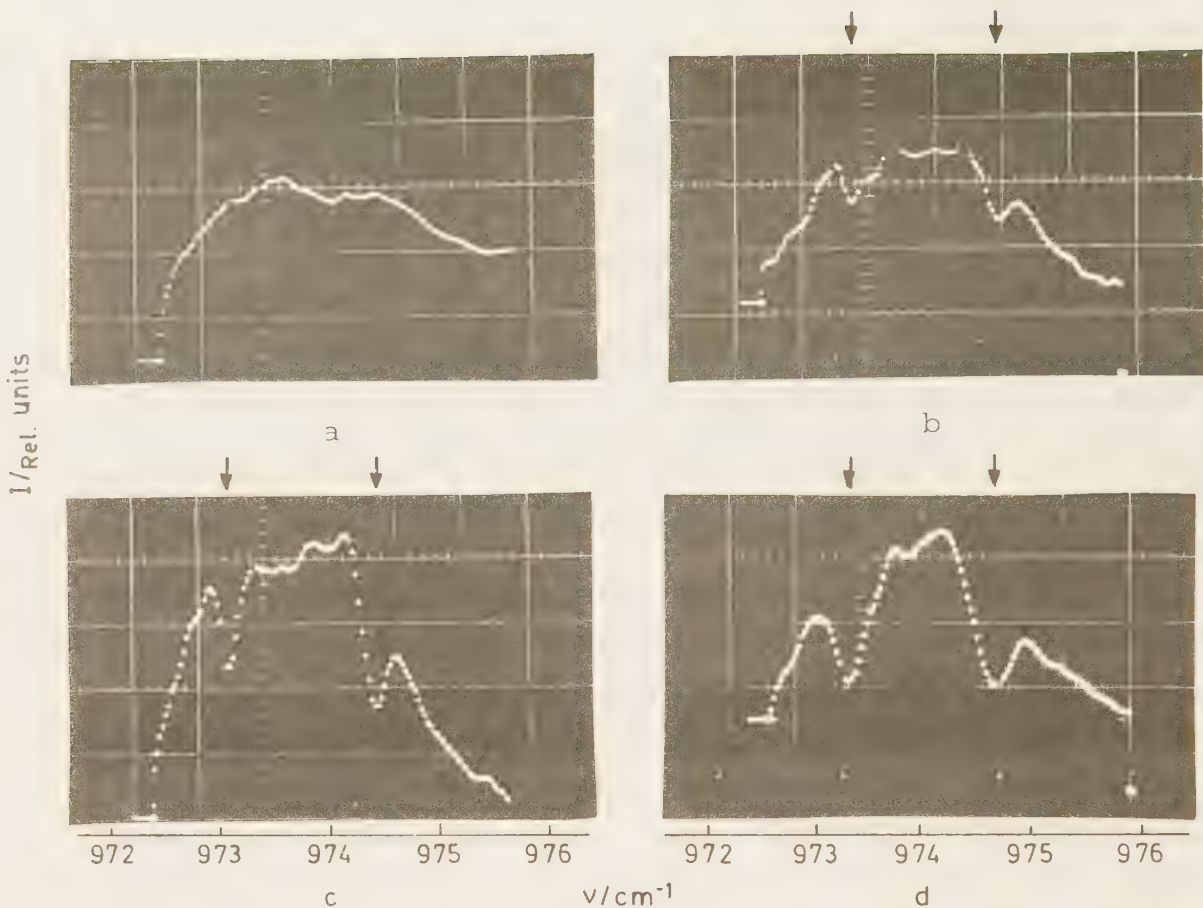


Abb. 20: Spektren mit CO_2 in der Absorptionszelle
a) Leere Zelle; b) 120 mbar CO_2 ;
c) 130 mbar CO_2 ; d) 650 mbar CO_2 .
Zu sehen sind 10R16 (linker Pfeil)
und 10R18 (rechter Pfeil)

Referenz benutzten 9R16- und 9R18-Absorptionslinien des CO_2 . Die Übergänge $\text{aR } (6,0)$, $\text{aR } (6,1)$ und $\text{aR } (6,2)$ der ν_2 Bande des NH_3 /123/ bei 1076.03 cm^{-1} , 1075.82 cm^{-1} bzw. 1075.21 cm^{-1} sind hier deutlich zu sehen.

Abbildung 22 ist die Aufnahme eines Spektrums im selben Bereich mit 40 mbar NH_3 , aber mit der Zelle außerhalb des Laserresonators.

Mit SF_6 wurde eine 1 m lange, gekühlte Absorptionszelle im Resonator angeordnet. In diesem Fall reicht schon 0.01 mbar SF_6 bei 177 K in der Zelle, um die Frequenzen des entsprechenden Q-Zweiges im Emissionsspektrum ganz zu löschen (Abb. 23).

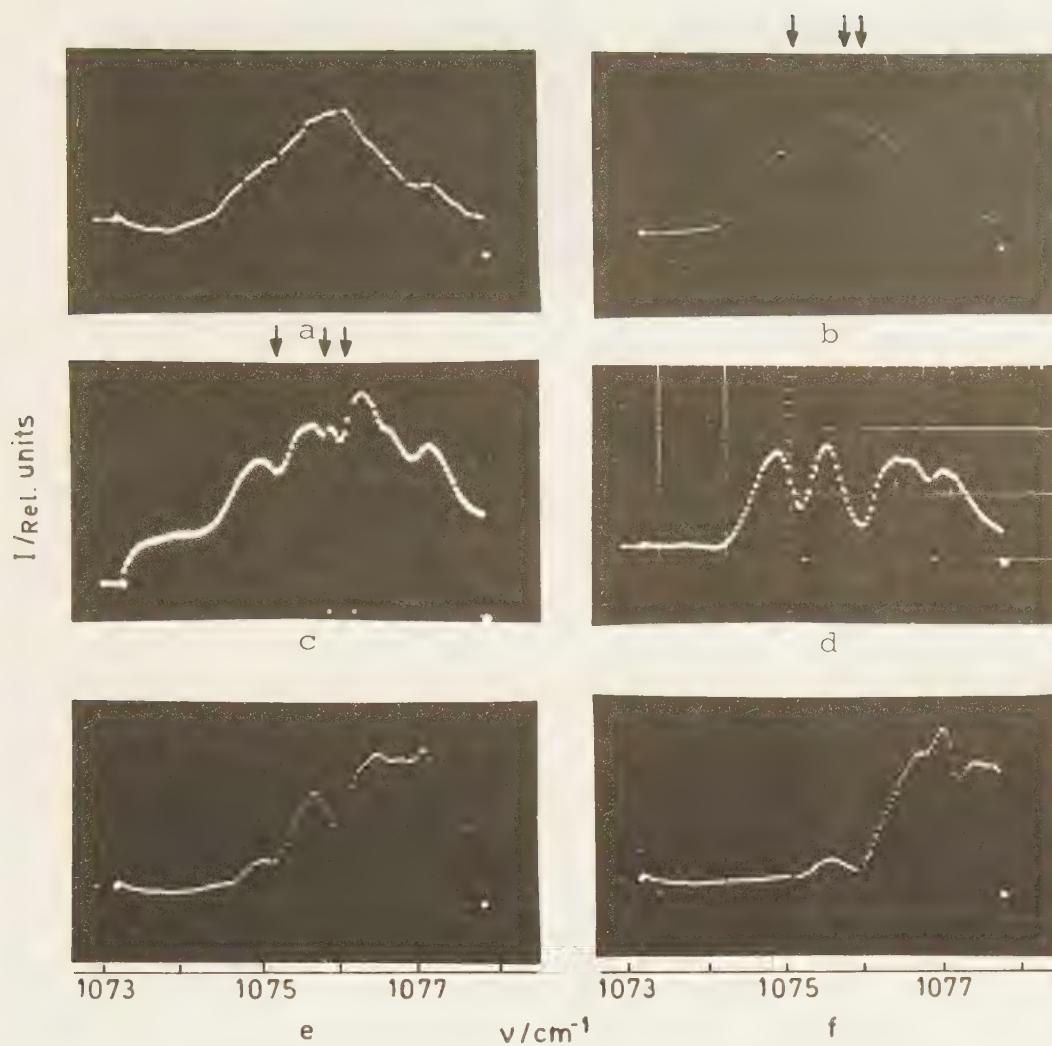


Abb. 21: Spektren mit NH_3 im Resonator (b, c, d) und zwei als Referenz benutzten CO_2 -Linien.
 a) Leere Zelle; b) 0.8 mbar NH_3 ; c) 1.5 mbar NH_3 ;
 d) 5.5 mbar NH_3 ; e) 9R16-Linie des CO_2 ;
 f) 9R18-Linie des CO_2 . Die Pfeile zeigen von links
 nacheinander die aR (6,2), aR (6,1) und
 aR (6,0) Linien der ν_2 Bande des NH_3 .

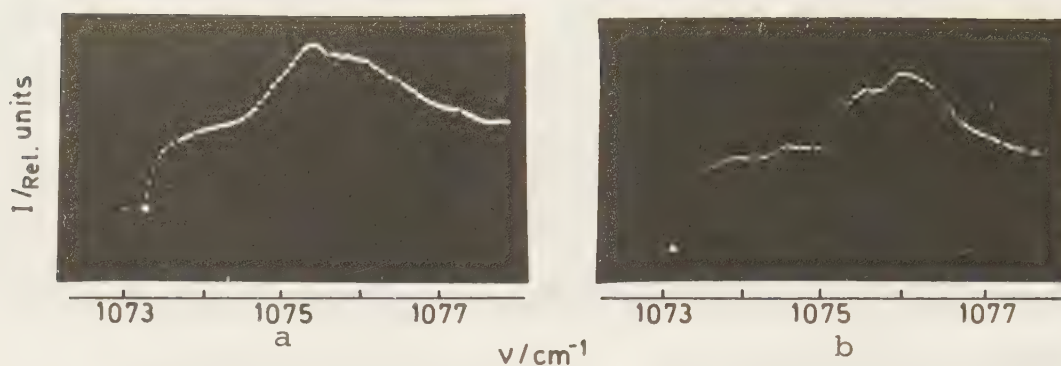


Abb. 22: Spektrum mit NH_3 in der Absorptionszelle außerhalb des Resonators.

a) Leere Zelle; b) 40 mbar NH_3 .

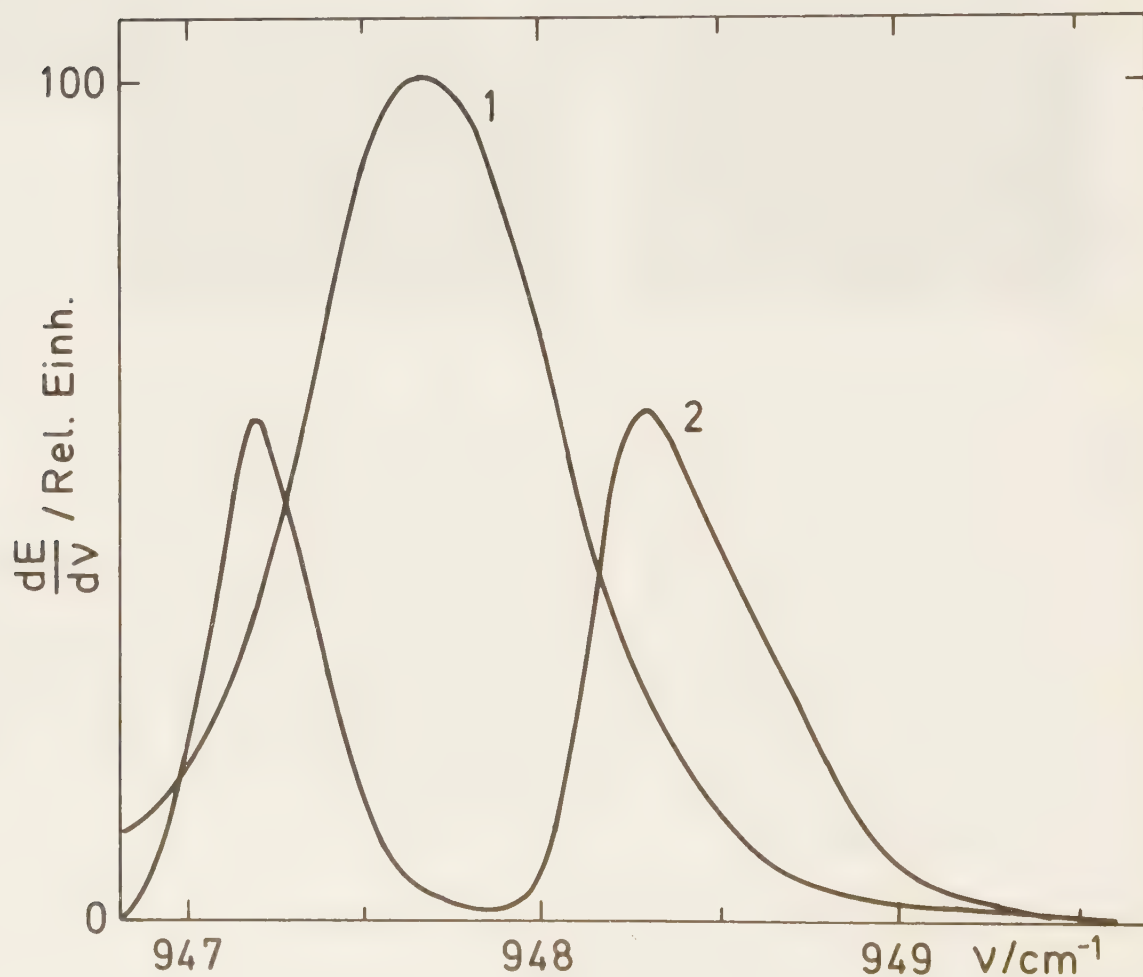


Abb. 23: Spektrum mit gekühltem SF_6 im Laserresonator

a) Leere Zelle; 2) 0.01 mbar SF_6 bei 177 K

Um die Rolle des Druckes des absorbierenden Gases und der Laserpulsenergie in der Absorption besser zu beobachten, wurden weitere Experimente mit CO_2 im Resonator durchgeführt. Abbildung 24 zeigt die Absorption der 10R16-Linie des Kohlendioxides bei verschiedenen Drücken, und Abb. 25 zeigt die Absorption derselben Linie bei 250 mbar und verschiedenen Pulsenergien.

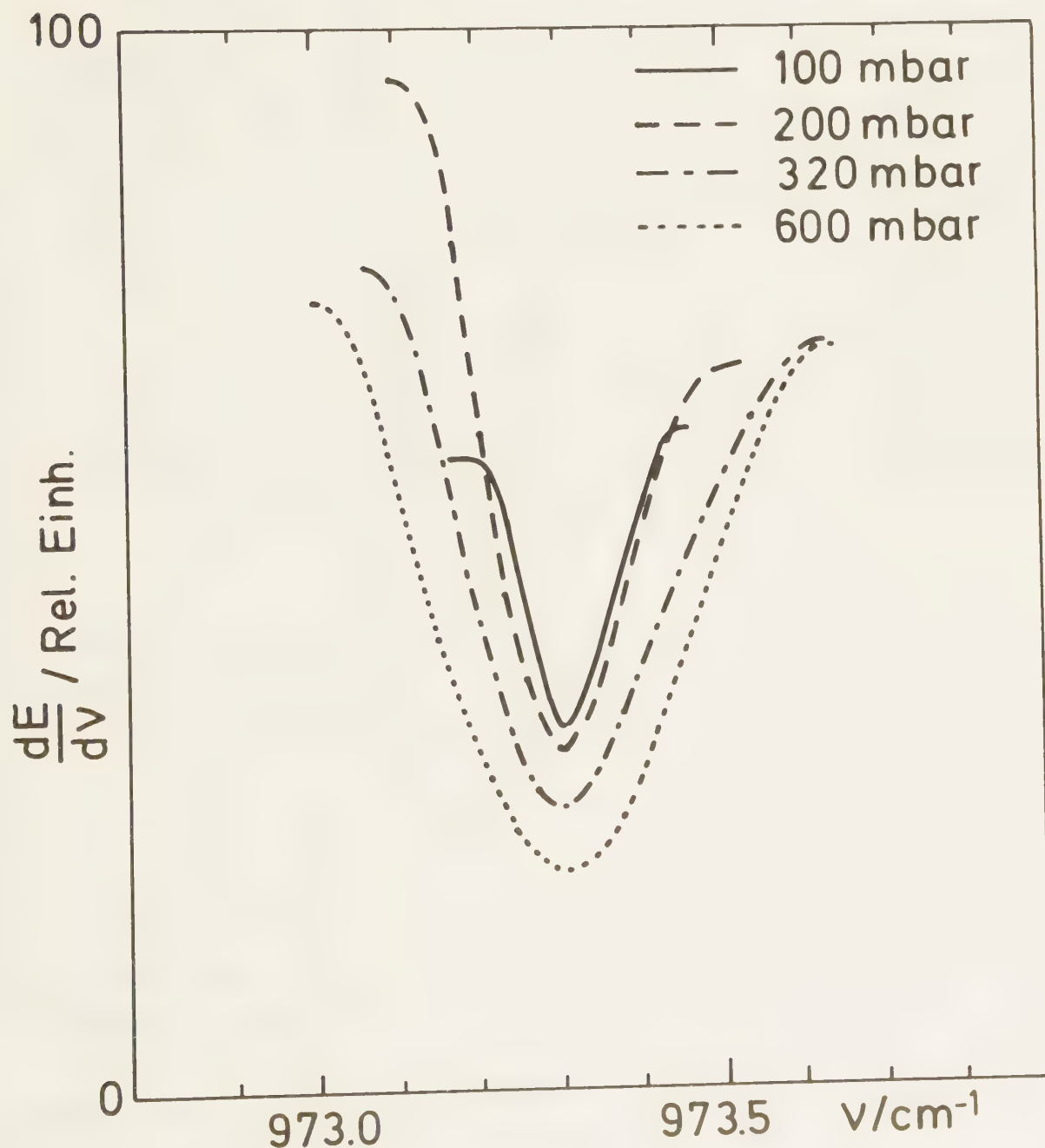


Abb. 24: Spektren mit verschiedenen Drücken von CO_2 in der Absorptionszelle bei der 10R16-Linie.

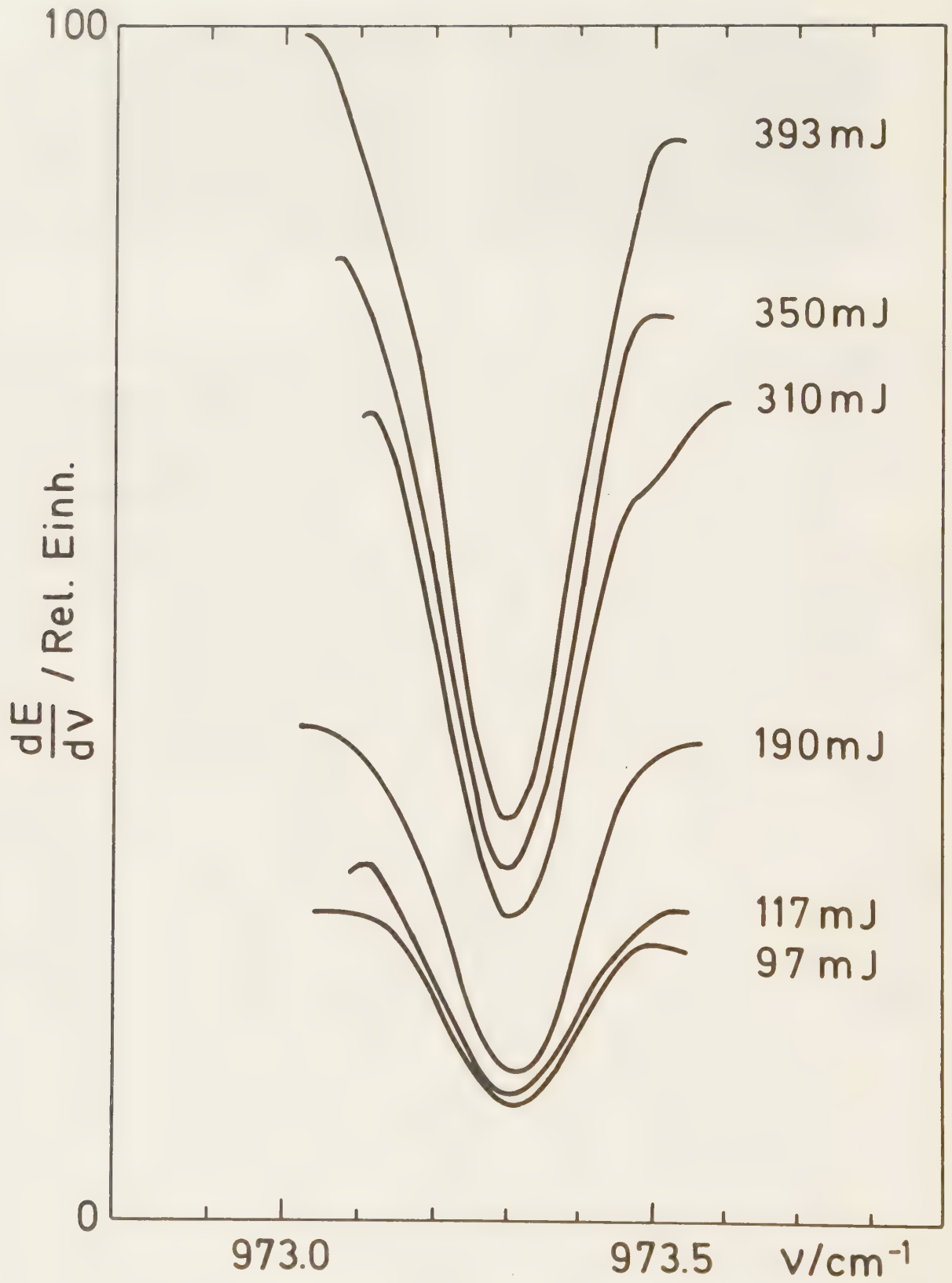


Abb. 25: Spektren mit 250 mbar CO_2 in der Absorptionszelle bei verschiedenen Pulsenergien

Experimente wurden schließlich noch mit verschiedenen Auskopplern und Resonatorlängen durchgeführt. Der spektrale Kontrast (d.h. die Empfindlichkeit) nimmt mit dem Reflexionsvermögen des Auskopplers zu und mit der Resonatorlänge ab.

4.4 Deutung

Die Kleinsignalabsorption der 41 cm langen Zelle mit 0.8 mbar NH_3 in einem Durchgang ist bei 1075.21 cm^{-1} ungefähr 4 % /123, 124/. Im Fall CO_2 ist der Absorptionskoeffizient $\alpha = 2.1 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ für höhere Drücke als 50 mbar /6/, was einer Absorption von etwa 8 % in einem Durchgang in unserer Zelle entspricht.

Mit der Zelle innerhalb des Resonators mißt man direkt nicht die Absorption, sondern die von den drei in der Einleitung erwähnten Faktoren verursachte Abschwächung der Laseremission. Diese Abschwächung oder Empfindlichkeit, wie sie in der Literatur genannt wird, wird hier als

$$\xi = \frac{E_2 - E_1}{E_2} = 1 - \frac{E_1}{E_2} \quad (4.4.1)$$

erklärt, wobei E_1 die emittierte spektrale Energiedichte im Bereich der absorbierten Frequenzen und E_2 dieselbe Größe bei den nicht betroffenen Frequenzen ist. Die gemessene Abschwächung mit 0.8 mbar NH_3 in der Zelle war etwa 27 % (Abb. 21), und mit 100 mbar CO_2 etwa 47 % (Abb. 24). Das entspricht also einer Verbesserung der Empfindlichkeit von einem Faktor 6.7 im Fall NH_3 und 5.8 im Fall CO_2 .

Diese Verbesserung der Empfindlichkeit kann für kurze Pulse durch den Effekt mehrerer Durchgänge im Laserresonator erklärt werden. Der Zeitverlauf der Photondichte im Resonator für eine absorbierte (n_1) bzw. eine nicht absorbierte (n_2) Frequenz der homogen verbreiterten Laseremission kann durch die Gleichungen beschrieben werden:

$$\frac{dn_1}{dt} = - \frac{c}{L} (\eta + \Delta\eta) n_1 + NS n_1 \quad (4.4.2)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = - \frac{c}{L} \eta n_2 + NS n_2 \quad (4.4.3)$$

Hierbei sind L die Länge des Resonators, N die Besetzungsinversion, S der Koeffizient für stimulierte Emission, η der Verlust des leeren Resonators und $\Delta\eta \approx \alpha\ell$ die Absorption der Zelle in einem Durchgang. Nimmt man näherungsweise an, daß N während der Einschwingzeit als $N = dF(t)/dt$ geschrieben werden kann, wobei F irgend eine neue Funktion von t ist, dann können die Lösungen der Differentialgleichungen als

$$n_1 = n_0 \exp \left[- \frac{c}{L} (\eta + \alpha\ell) t + SF(t) \right] \quad (4.4.4)$$

$$n_2 = n_0 \exp \left[- \frac{c}{L} \eta t + SF(t) \right] \quad (4.4.5)$$

geschrieben werden, wobei n_0 die anfängliche Photondichte (von der spontanen Emission) ist. Daraus folgt

$$\frac{n_1}{n_2} = \exp \left(- \frac{\alpha\ell}{L} ct \right) \quad (4.4.6)$$

Am Zeitpunkt t_s , wenn die Besetzungsinversion bis auf die Schwelle absinkt, am Ende der stimulierten Emission also:

$$\frac{n_{1s}}{n_{2s}} = \exp \left(- \frac{\alpha\ell}{L} c t_s \right) \quad (4.4.7)$$

Das heißt: Am Ende der stimulierten Emission ist die (zeitaufgelöste) Empfindlichkeit dieselbe wie bei einer Absorptionszelle, deren Länge $c t_s \ell/L$ ist. Für $t > t_s$ klingen die Moden nach ihren eigenen Zeitkonstanten ab:

$$n_1 = n_{1s} \exp [-(\eta + \Delta\eta) (t - t_s)c/L] \quad (4.4.8)$$

$$n_2 = n_{2s} \exp [-\eta(t - t_s)c/L] \quad (4.4.9)$$

Die gemessenen Größen sind die integrierten Intensitäten, so daß

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{\int_0^{t_s} n_1 dt + \int_{t_s}^{\infty} n_1 dt}{\int_0^{t_s} n_2 dt + \int_{t_s}^{\infty} n_2 dt} \quad (4.4.10)$$

Die ersten Integralen über und unter dem Bruchstrich sind vernachlässigbar, wie man aus Abb. 26 erkennen kann. Es ergibt sich endlich

$$\xi = 1 - \frac{E_2}{E_1} = 1 - \frac{\eta}{\eta + \Delta\eta} \exp \left(- \frac{\alpha \ell}{L} c t_s \right) \quad (4.4.11)$$

für die gesamte Abschwächung der absorbierten Frequenz während des Pulses. Wenn man $t_s = 50$ ns, wie in Abb. 26, annimmt, stimmen die Werte der Empfindlichkeit von Gl. (4.4.11) mit den gemessenen (Abb. 20, 23) überein.

Es ist auf den ersten Blick überraschend, daß Sättigungseffekte in der Abschwächung trotz der hohen Spitzenleistungen anscheinend keine wichtige Rolle spielen. (In Abb. 24 z.B. sieht man, daß ξ nicht von der gesamten Pulsenergie abhängt). Das kann aber leichter verstanden werden, wenn man das Ergebnis der Experimente mit SF_6 (Abb. 22) betrachtet. Der relativ hohe Absorptions-

koeffizient (Absorptionsquerschnitt $\approx 5 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ /125/) erlaubt hier gar keine Laseremission im Bereich der entsprechenden Frequenzen. Auch in den Fällen aber, in denen die Absorption nicht so extrem ist, wird die Laserverstärkung in den betroffenen Frequenzen von Anfang an gehemmt, so daß die in diesem Bereich vorhandene Energie (d.h. die Energie, die in diesem Bruchteil des Emissionsspektrums bis zur Zeit $t = t_s$ mit dem absorbierenden Gas wechselwirkt) bei kurzen Pumpimpulsen nicht genügt, um den Besetzungsunterschied des Absorptionsüberganges auszugleichen. Bei 100 mbar CO_2 in der Zelle z.B. ist die gesamte Zahl der absorbierenden Moleküle auf der 10R16-Linie etwa 10^{18} . Die Emissionsbreite des Lasers ist 2.5 cm^{-1} , während die Absorption in einem Bereich von etwa 0.13 cm^{-1} geschieht. Die gesamte Zahl der absorbierten Photonen ist in diesem Fall also (von Abb. 24 und $\alpha = 2.1 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ berechnet) etwa 10^{17} . Von diesen Photonen aber sind nur die ersten, die während der Zeit $t < t_s$ absorbiert werden, für die Abschwächung wichtig (Gl. 4.4.11). Diese Zahl ist viel kleiner als die Zahl der absorbierenden Moleküle, und α kann in der Gl. (4.4.6) für $t \leq t_s$ als konstant angenommen werden. Die Empfindlichkeit wächst mit der Dauer der stimulierten Emission. Für Pulsdauern der Größenordnung von $1 \mu\text{s}$ oder länger aber muß t_s in der Gl. (4.4.11) durch die Lebensdauer der individuellen Moden der Laseremission ersetzt werden /116/. In den Fällen andererseits, in denen Sättigungsphänomene vorkommen (d.h. sehr große σ , sehr kleine p) muß t_s als der Zeitpunkt genommen werden, für den diese Phänomene wichtig sind.

Der lineare Absorptionskoeffizient des CO_2 ist andererseits für höhere Drücke als 50 mbar konstant, $\alpha = 2.1 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ /6/, da die Zunahme der Konzentration mit dem Druck von der Stoßverbreiterung ausgeglichen wird. In unseren Messungen mit CO_2 innerhalb des Laserresonators

aber (Abb. 24) ist die Breite der Absorption immer größer als diejenige, die nur von der Stoßverbreiterung zu erwarten wäre ($1.9 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}/\text{mbar}$). Trotzdem ist auch hier die gesamte Abschwächung $\int E_{\text{abs}}(\nu) d\nu$ zum Druck proportional.

4.5 Modellrechnungen mit kinetischen Gleichungen

In einem Modell mit Differentialgleichungen /106, 112/ wird das Emissionsspektrum in mehrere Kanäle (die longitudinalen Moden des Resonators) geteilt. Einigen von ihnen wird ein größerer Verlust, d.h. eine selektive Absorption zugeschrieben. Wenn die Frequenzverbreiterung des Lasermediums homogen ist, wird dieses System durch die kinetischen Gleichungen für die Photonendichte $\hat{n}_j$ jedes Kanals j und für die Besetzungsinversion jedes teilnehmenden Laserübergangs N_μ beschrieben:

$$\begin{aligned} \frac{d\hat{n}_j}{dt} = & -\frac{c}{L} \eta_j \hat{n}_j + \hat{S} \left[\sum_{\mu} \int_0^L \frac{\frac{\Gamma}{2\pi}}{(\nu_\mu - \nu_j)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} f_j(z) N_\mu(z) dz \right] \hat{n}_j + \\ & + \hat{A} \left[\sum_{\mu} \int_0^L \frac{\Gamma/2\pi}{(\nu_\mu - \nu_j)^2 + (\Gamma/2)^2} f_j(z) N_\mu(z) dz \right] \end{aligned} \quad (4.5.1)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_\mu(z)}{dt} = & R_\mu(t) - 2 \hat{S} N_\mu(z) \sum \frac{\Gamma/2\pi}{(\nu_\mu - \nu_j)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} f_j(z) \hat{n}_j - \\ & - \gamma N_\mu(z) \end{aligned} \quad (4.5.2)$$

Hier stellen die noch nicht erklärten Buchstaben die folgenden Größen dar:

- $\hat{\nu}_j$ = Emissionsfrequenz des Kanals j
 ν_μ = Zentrale Frequenz des Laserübergangs μ
 η_j = Verlust des Kanals j in einem Durchgang
 R_μ = Pumprate zum Niveau μ
 $\hat{S}$ = Koeffizient der stimulierten Emission
 $\hat{A}$ = Koeffizient der spontanen Emission
 Γ = Homogene Breite der Emission
 γ = Zerfallsgeschwindigkeit der angeregten Zustände
 z = Stelle längs des Resonators.

Die Funktion $f_j(z)$ sowie die Raumabhängigkeit von N_μ stellen die Möglichkeit einer inhomogenen Anregungsdichte längs des Resonators dar. Solche Inhomogenitäten sind besonders bei langen Pulsen und Dauerstrichlasern wichtig, da sie teilweise für die Koexistenz mehrerer Moden trotz der Modenkonkurrenz verantwortlich sind. Bei kurzen Pulsen aber spielt Modenkonkurrenz keine wichtige Rolle, und es macht keinen Unterschied, wenn man die Dichte der angeregten Moleküle als konstant längs des Resonators annimmt. Damit werden die Summen in (4.5.1), (4.5.2) gleich für alle Kanäle und das System kann vereinfacht werden:

$$\frac{d\hat{n}_j}{dt} = -\frac{c}{L} \eta_j \hat{n}_j + S \hat{n}_j \sum_{\mu} N_{\mu} + A \sum_{\mu} N_{\mu} \quad (4.5.3)$$

$$\frac{dN_{\mu}}{dt} = R_{\mu}(t) - 2 S N_{\mu} \sum_j \hat{n}_j - \gamma N_{\mu} \quad (4.5.4)$$

In diesem Punkt setzt man voraus, daß die Absorption in den M_1 Kanälen ($j = 1, 2, \dots, M_1$) geschieht, alle mit gleichem Verlust η_1 , während die anderen M_2 Kanäle, in denen es keine Absorption gibt, den Verlust η_2 pro Durchgang haben. Mit der Definition neuer Variablen

$$n_1 = \sum_{j=1}^{M_1} \hat{n}_j ; \quad n_2 = \sum_{j=M_1+1}^{M_1+M_2} \hat{n}_j ; \quad N = \sum_{\mu} N_{\mu} \quad (4.5.5)$$

wird das System (4.5.3), (4.5.4) zu drei gekoppelten Differentialgleichungen reduziert, nämlich

$$\frac{dn_1}{dt} = - \frac{c}{L} n_1 n_1 + SN n_1 + M_1 AN \quad (4.5.6)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = - \frac{c}{L} n_2 n_2 + SN n_2 + M_2 AN \quad (4.5.7)$$

$$\frac{dN}{dt} = R(t) - 2 SN (n_1 + n_2) - \gamma N \quad (4.5.8)$$

Vernachlässigt man die Verluste durch Streuung im Resonator, dann können die durchschnittlichen Verluste der "offenen" bzw. "gesperrten" Kanäle in einem Durchgang als

$$\eta_2 = \frac{1}{2} (1-R) \quad (4.5.9)$$

$$\eta_1 = \frac{1}{2} (1 - Re^{-2\alpha\ell}) \quad (4.5.10)$$

geschrieben werden, wobei R das Reflexionsvermögen des Auskopplers ist.

Experimentell werden die integrierten spektralen Intensitäten gemessen:

$$E_1 = \frac{1-R}{M_1(1+R)} \int n_1(t) dt \quad (4.5.11)$$

$$E_2 = \frac{1-R}{M_2(1+R)} \int n_2(t) dt \quad (4.5.12)$$

Wenn die Absorption in der Zelle in einem Durchgang $\delta = 1 - \exp(-\alpha\ell)$ ist, und die Empfindlichkeit ξ der Messungen im Resonator durch die Gl. (4.4.1) erklärt wird, kann man einen Faktor f als die Verbesserung der Empfindlichkeit definieren:

$$f = \frac{\xi}{\delta} \quad (4.5.13)$$

Die Differentialgleichungen wurden für n_1 , n_2 und N numerisch berechnet. Diese Größe, sowie die Pumprate $R(t)$, wurden als Durchschnitte längs des Resonators behandelt. Die Pumprate wurde aus den Zeitverläufen des Entladungsstroms und des Emissionspulses abgeleitet:

$$R(t) = 4.3 \times 10^{34} \frac{t/s}{L/cm} \text{ cm}^{-3} \cdot s^{-1} \text{ für } t \leq 30 \times 10^{-9} \text{ s} \quad (4.5.14)$$

$$R(t) = \frac{1.29 \times 10^{27}}{L/cm} \exp[-(10^9 t/s - 30)/50] \text{ cm}^{-3} s^{-1} \quad \text{für } t > 30 \times 10^{-9} \text{ s} \quad (4.5.15)$$

Der Koeffizient für spontane Emission A in jedem Kanal wurde nach Lit. /126/ als $0.2 \text{ s}^{-1}/(M_1 + M_2)$ genommen, und der für stimulierte Emission S wurde als

$$S = c \cdot \sigma \quad (4.5.16)$$

berechnet, wobei σ alle Beiträge der überlappenden stoßverbreiterten Linien des CO_2 zum Querschnitt für stimulierte Emission einschließt, d.h.

$$\sigma = \sum_i \sigma_i(\nu) \quad (4.5.17)$$

Die Breite der CO_2 -Laserlinien bei 20 bar ist etwa 2.6 cm^{-1} /19/. Das entspricht zweimal dem typischen Abstand zwischen den Linien. Beim Zusammenrechnen findet man

$$\sigma = 2.8 \sigma_0 \quad (4.5.18)$$

wobei σ_0 der maximale Querschnitt einer einzigen Linie ist. Dieser σ_0 ist seinerseits /127/

$$\sigma_0 = A \lambda^2 / 4\pi^2 \Delta\nu \quad (4.5.19)$$

wobei Δv die Stoßverbreiterung ist. In den Rechnungen wurde der Wert $S = 4 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-3}/\text{s}$ benutzt.

Die Zerfallsgeschwindigkeit der angeregten Zustände γ wurde von Lit. /128/ durch eine Extrapolation für höhere Drücke, mit 10^4 s^{-1} angenommen. Variationen dieses Wertes zwischen 0.2 s^{-1} und 10^5 s^{-1} verursachten keinen wesentlichen Unterschied in den Ergebnissen.

Abbildung 26 zeigt ein typisches Ergebnis solcher Rechnungen mit Absorptionskoeffizient $\alpha = 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$, Zellenlänge $\ell = 41 \text{ cm}$, Resonatorlänge $L = 200 \text{ cm}$ und Reflexionsvermögen $R = 0.52$. Die von der Integration

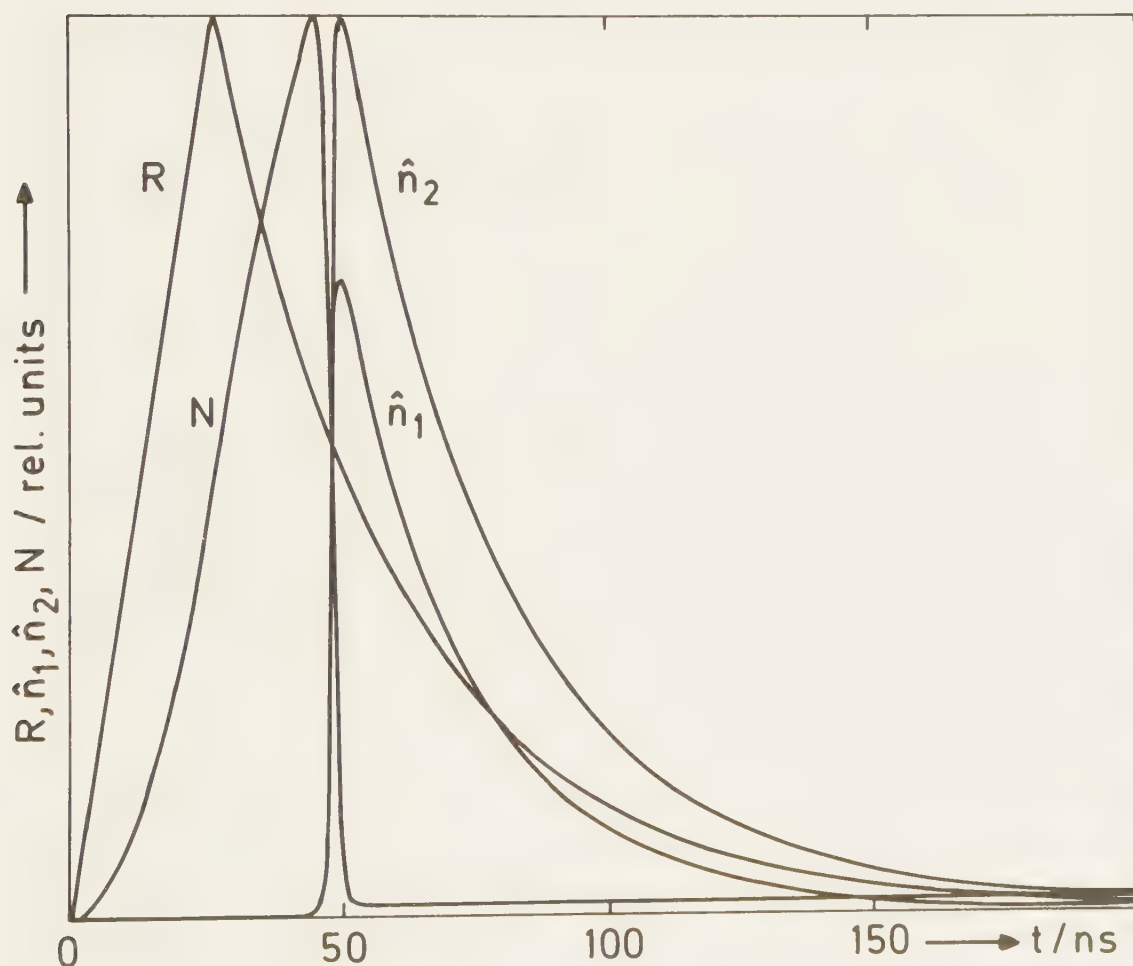


Abb. 26: Zeitverlauf der Pumprate $R(t)$, der Photonendichte $\hat{n}_1$ in einer absorbierten Frequenz, der Photonendichte $\hat{n}_2$ in einer nicht absorbierten Frequenz und der Besetzungsinversion N , mit einem Absorptionskoeffizient $\alpha = 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$, einer Zellenlänge $\ell = 41 \text{ cm}$, einer Resonatorlänge $L = 200 \text{ cm}$ und einem Reflexionsvermögen des Auskopplers $R = 0.52$ berechnet.

solcher Kurven mit gleichen Werten von L und ℓ entstandenen Abschwächungen ξ werden in Abb. 27 als Funktion der Absorption der Zelle in einem Durchgang und des Reflexionsvermögens R gezeigt. Der Faktor $f = \xi/\delta$, also die Verbesserung der Empfindlichkeit, wird in Abb. 28 als Funktion von R und δ dargestellt. Diese Rechnungen zeigen eine gute

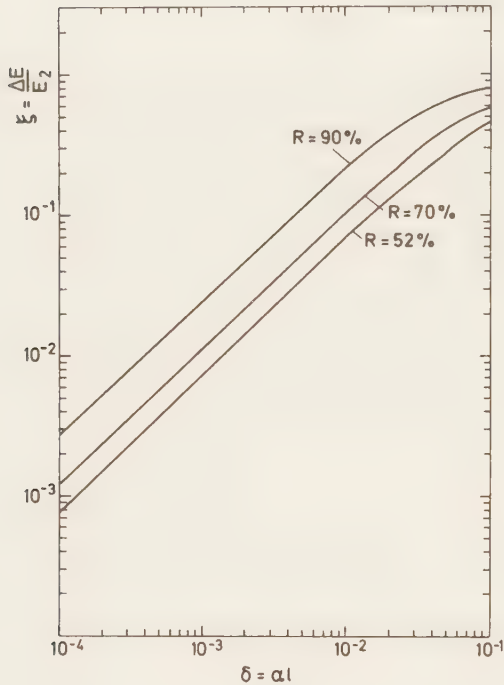


Abb. 27: Empfindlichkeit ξ als Funktion der Absorption der Zelle in einem Durchgang, $\delta = \alpha \times \ell$ und des Reflexionsvermögens R .

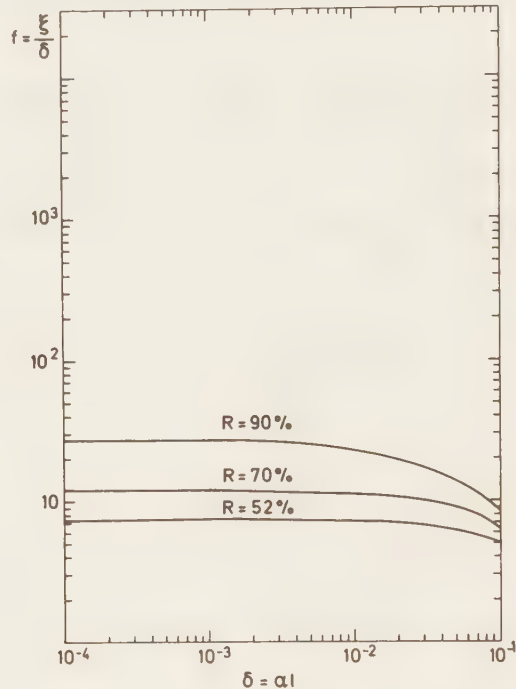


Abb. 28: Steigerung der Empfindlichkeit für Messungen mit der Absorptionszelle im Resonator f als Funktion von δ und R .

Übereinstimmung mit unseren experimentellen Ergebnissen (Abb. 20-25) für die Abschwächung der zentralen absorbier-ten Frequenzen der Gase bei niederem Druck, aber können die beobachteten Breiten sowie die Zunahme der Abschwächung mit dem Druck im Fall CO_2 nicht erklären.

4.6 Schlußfolgerung

Von den Rechnungen mit dem beschriebenen Modell (Abb. 26) sieht man, daß die Abschwächung ξ mit der Güte des Resonators wächst. Das kann man auch in der Gl. (4.4.11) sehen. Abbildung 27 zeigt andererseits, daß der Faktor f (die Verbesserung der Empfindlichkeit) größer ist für kleine Absorptionen, d.h., der Unterschied zwischen Messungen mit der Absorptionszelle innerhalb und außerhalb des Resonators ist besonders für Gase bei niederem Druck deutlich. Die Gl. (4.4.11) zeigt noch, daß die Empfindlichkeit sehr schnell mit der Dauer des Pulses wächst. Die große Empfindlichkeit ist natürlich eine wichtige Besonderheit bei langen Pulsen und Dauerstrichlasern. In einem Dauerstrichlaser bleibt die Besetzungsinversion nach der vorübergehenden Phase des Einschaltens an der Schwelle der Frequenz mit niedrigsten Verlusten. Deshalb werden die durch Absorption benachteiligten Frequenzen wegen Modenkonkurrenz und der Schwellennatur der Laseremission selbst in kurzer Zeit unterdrückt. In diesem Fall ist die Empfindlichkeit einfach von dem Verhältnis zwischen spontaner und stimulierter Emission kontrolliert und vom Wert der Absorption selbst unabhängig. Während der vorübergehenden Phase der Anregung aber ist die Empfindlichkeit zeitabhängig, und die Geschwindigkeit, mit der das System die maximale Empfindlichkeit erreicht, hängt von α ab. In einem gepulsten System bleibt die Besetzungsinversion also für mehrere Frequenzen über der Schwelle. Für kurze Pulse, so wie die von unserem CO_2 -Laser, ist natürlich die Empfindlichkeit nicht so groß wie bei längeren Pulsen. Dafür aber bleiben viele Frequenzen während des Pulses über der Schwelle, und der Absorptionskoeffizient ist im Prinzip aus der Abschwächung berechenbar. Wegen der kurzen Dauer des Pulses kann der absorbierende Übergang nur in besonderen

Fällen (sehr große σ , sehr kleine p) gesättigt werden, und weil die Modenkonkurrenz keine wichtige Rolle spielt, ist die Abschwächung praktisch von der Breite der Absorption unabhängig. Die Güte des Resonators und die Dauer der Anregungspulse können ohne große Schwierigkeiten in gewissem Maß geändert und so ausgewählt werden, daß ein Kompromiß zwischen Empfindlichkeit und den anderen erwähnten Eigenschaften gefunden wird.

Mit dem beschriebenen Experiment haben wir schließlich die Möglichkeit und Nutzbarkeit der breitbandigen Spektroskopie innerhalb des Resonators eines Hochdruck- CO_2 -Lasers vorgeführt. Das dehnt eine leistungsfähige spektroskopische Methode in den Spektralbereich des CO_2 -Lasers aus.

Literatur

- /1/ O.R. Wood, II: IEEE J.Q.El. 10 (1974) 355
- /2/ N.G. Basov u.a.: Jetp Lett. 14 (1971) 285
- /3/ N.G. Basov u.a.: Sov.J.Q.El. 1 (1971) 306
- /4/ N.G. Basov u.a.: Jetp Lett. 14 (1971) 375
- /5/ G. Herzberg: "Molecular Spectra and Molecular Structures", Vol. 2, D. Van Nostrand (1959)
- /6/ V.V. Nevdakh: Sov.J.Q.El. 14 (1984) 1091
- /7/ B.S. Patel, P. Swarup: J. Phys. D: Appl.Phys. 6 (1973) 1670
- /8/ Nien-Chih Chang, M.T. Tavis: IEEE J.Q.El. 10 (1974) 372
- /9/ A.J. Alcock, R. Fedosejevs, A.C. Walker; IEEE J.Q.El. 11 (1975) 767
- /10/ R.L. Abrams: Appl.Phys.Lett. 25 (1974) 609
- /11/ O.R. Wood, R.L. Abrams, T.J. Bridges: Appl.Phys.Lett. 17 (1970) 376
- /12/ N.G. Basov u.a.: Jetp.Lett. 17 (1973) 102
- /13/ A.M. Robinson: Can.J.Phys. 48 (1970) 1996
- /14/ D.C. Johnson: IEEE J.Q.El. 7 (1971) 185
- /15/ A.K. Laflamme: Rev.Sc.Instr. 41 (1970) 1578
- /16/ A.C.G. Mitchell, M.W. Zemansky: "Resonance Radiation and Excited Atoms", Cambridge at the University Press (1961)
- /17/ R.G. Greene, Jr.: "The Shift and Shape of Spectral Lines", Pergamon Press (1961)
- /18/ W.R. Hindmarsh, A.D. Petford, G. Smith: Proc. Roy. Soc. A 297 (1449), 296 (1967)
- /19/ R.S. Taylor u.a.: IEEE J.Q.El. 15 (1979) 1131
- /20/ J. Reid, K.J. Siemsen: IEEE J.Q.El. 14 (1978) 217
- /21/ J.L. Miller, A.H.M. Ross, E.V. George: Appl.Phys.Lett. 26 (1975) 523

- /22/ J.L. Miller: J.Appl.Phys. 49 (1978) 3076
- /23/ V. Weisskopf: Physik.Z. 34 (1933) 1
- /24/ Shang-Yi Ch'en, Makoto Takeo: Rev.Mod.Phys. 29
(1957) 20
- /25/ A.M. Robinson: Can.J.Phys. 50 (1972) 2471
- /26/ J.A. Beaulien: Proc. IEEE 59 (1971) 667
- /27/ A.E. Hill: Appl.Phys.Lett. 12 (1968) 324
- /28/ A.J. Beaulien: Appl.Phys.Lett. 16 (1970) 504
- /29/ E. Nasser: "Fundamentals of Gaseous Ionization and
Plasma Electronics", Wiley-Interscience (1971)
- /30/ H. Raether: "Electron Avalanches and Breakdown
in Gases", Butterworths, London (1964)
- /31/ V.N. Karnyushin, R.I. Soloukhin: Sov.Phys.Dokl.
22 (1977) 521
- /32/ A. Engel, M. Steenbeck: "Elektrische Gasentladungen.
Ihre Physik und Technik", Springer, Berlin (1934)
- /33/ A.M. Robinson: IEEE J.Q.El. 7 (1971) 199
- /34/ T.Y. Chang, O.R. Wood: IEEE J.Q.El. 8 (1972) 721
- /35/ V.N. Bagratashvili, I.N. Knyazev, V.S. Letokhov:
Opt.Comm. 4 (1971) 154
- /36/ R.K. Garnsworthy, L.E.S. Mathias, C.H.H. Carmichael:
Appl.Phys.Lett. 19 (1971) 506
- /37/ C.A. Fenstermacher u.a.: Appl.Phys.Lett. 20
(1972) 56
- /38/ N.W. Harris, F. O'Neil, W.T. Whitney: Appl.Phys.Lett.
25 (1974) 148
- /39/ W.E. Schmid: "Aufbau und Untersuchung von CO₂-
Laserverstärkern mit selbständiger und un-
selbständiger Gasentladung", IPP Bericht IV/84,
Aug. 1975
- /40/ V.N. Bagratashvili u.a.: Sov.J.Q.El. 6 (1976) 541
- /41/ Yu.I.Bychkov, V.M. Orlovskii, V.V. Osipov:
Sov.J.Q.El. 7 (1977) 1390

- /42/ S.S. Alimpiev u.a.: Sov.Tech.Phys.Lett. 5 (1979) 336
- /43/ D.J. Hidson, V. Makios, R.W. Morrison:
Phys.Lett. 40A, No. 5 (1972) 413
- /44/ K.O. Tan, V. Makios, R.W. Morrison: Phys. Lett. 38A,
N. 4 (1972) 225
- /45/ M. Blanchard u.a.: J.Appl.Phys. 45 (1974) 1311
- /46/ S. Lovold, G. Wang: IEEE J.Q.El. 20 (1984) 182
- /47/ T.Y. Chang, O.R. Wood: Appl.Phys.Lett. 23 (1973) 370
- /48/ A.J. Alcock, K. Leopold, M.C. Richardson:
Appl.Phys.Lett. 23 (1973) 562
- /49/ T. Carman, P.E. Dyer: J.Appl.Phys. 49 (1978) 3742
- /50/ Lu Bao-wei: Conf. Laser '79, Orlando, Florida, USA
- /51/ R.B. Gibson, K. Boyer, A. Javan: IEEE J.Q.El.
15 (1979) 1224
- /52/ P. Mathieu, J.R. Jzatt: Opt.Lett. 6 (1981) 369
- /53/ G. Herzinger, R. Wollermann-Windgasse, K.H. Banse:
Appl.Phys. 24 (1981) 267
- /54/ K. Midonkawa u.a.: Rev.Sci.Instr. 53 (1982) 449
- /55/ I.N. Knyazev, A.A. Sarkisian: Opt.Comm. 52 (1985) 421
- /56/ A.L.S. Smith, J. Mellis: Appl.Phys. B37 (1985) 171
- /57/ P.E. Dyer, D.N. Raouf: Opt. Comm. 53 (1985) 36
- /58/ Wan Chong-Yi u.a.: Opt.Comm. 46 (1983) 311
- /59/ N.W. Harris, F. O'Neil, W.T. Whitney: Opt.Comm.
16 (1976) 57
- /60/ Model 120 e-beam controlled laser system -
Instruction Manual (Systems, Science and Software,
San Francisco, USA)
- /61/ J. Alexeff: IEEE Trans. Plasma Sci. 2 (1973) 10
- /62/ A.J. Palmer: Appl.Phys.Lett. 25 (1974) 138
- /63/ J.I. Levatter, Shao-Chi Lin: J.Appl.Phys. 51
(1980) 210
- /64/ H.S.W. Massey, E.H.S. Burhop: "Electronic and Ionic
Impact Phenomena", Oxford U.P., London (1969)

- /65/ M.C. Cornell u.a.: J.Appl.Phys. 54 (1983) 1723
- /66/ F. O'Neill, W.T. Whitney: Appl.Phys.Lett. 31
(1977) 270
- /67/ R. Burnham, N. Djeu: Appl.Phys.Lett. 29 (1976) 707
- /68/ R.R. Butcher u.a., OSA meeting, Reno, Nevada,
USA, Jan. 1983
- /69/ G.F. Erickson, P.N. Mace, Rev.Sci.Instrum. 54
(1983) 586
- /70/ R.V. Ambartzumian, V.S. Letokhov, in:
"Chemical and biochemical applications of lasers",
ed. C.B. Moore, Academic Press, New York, 1977)
- /71/ V.S. Letokhov, in: Springer Ser. Chem. Phys.,
V. 22: Nonlinear laser chemistry. Multiple photon
excitation (Springer, Berlin, 1973)
- /72/ W. Fuß, K.L. Kompa: Prog. Quant. Electr. 7 (1981)
117
- /73/ N. Bloembergen, E. Yablonovitch: Phys. Today 31
(1978) 23
- /74/ P.J. Robinson: "Unimolecular Reactions" (Wiley,
London, 1972)
- /75/ W. Forst: "Theory of Unimolecular Reactions",
(Academic Press, New York, 1983)
- /76/ S.S. Alimpiev u.a.: Appl.Phys. B35 (1984) 1
- /77/ J.G. Black u.a.: Phys.Rev.Lett. 38 (1977) 1131
- /78/ M.J. Schultz, E. Yablonovitch: J.Chem.Phys. 68
(1978) 3007
- /79/ V.M. Akulin, S.S. Alimpiev, N.V. Karlov:
Sov.Phys. JETP 47 (1978) 257
- /80/ V.M. Akulin u.a.: JETP Lett. 25 (1977) 400
- /81/ S.S. Alimpiev u.a.: JETP Lett. 35 (1982) 361
- /82/ I. Kitazima: Opt.Comm. 53 (1985) 27
- /83/ D.P. Hodgkinson u.a.: Chem.Phys.Lett. 90 (1982) 230;
J.Phys. B14 (1981) 1803

- /84/ C. Di Lauro, F. Lattanzi: Chem.Phys. 71 (1982) 233;
C. Di Lauro, F. Lattanzi, G. Sanna: Chem.Phys.
73 (1982) 215
- /85/ C.D. Cantrell, W.M. Lee: Chem.Phys.Lett. 93
(1982) 267
- /86/ D.P. Hodgkinson, A.J. Taylor: Opt.Comm. 50
(1984) 214
- /87/ V.N. Bagratashvili u.a.: Chem. Phys. 97 (1985) 13
- /88/ J.G. Black: Thesis, Harvard University (1980)
- /89/ J.G. Black u.a.: Phys. Rev. A 19 (1979) 704
- /90/ H.S. Kwok, E. Yablonovitch, N. Bloembergen:
Phys. Rev. A 23 (1981) 3094
- /91/ W. Fuß: Chem. Phys. 76 (1983) 343
- /92/ K. Huang: "Statistical Mechanics", Wiley,
New York, 1963
- /93/ P.F. Moulton u.a.: Opt.Lett. 1 (1977) 51
- /94/ P. Kolodner u.a.: Opt.Lett. 4 (1979) 38
- /95/ K. Kim, R.S. McDowell, W.T. King: J.Chem.Phys.
73 (1980) 36
- /96/ G. Hancock, A.J. Macrobert: Chem.Phys.Lett.
101 (1983) 312
- /97/ V.M. Apatin, G.N. Makarov: Appl.Phys. B 30
(1983) 207
- /98/ R.V. Ambartzumian, G.N. Makarov, A.A. Puretzky:
Opt. Comm. 34 (1980) 81
- /99/ S.D. Smith u.a. in: "Laser Induced Processes in
Molecules", Ed. K.L. Kompa, S.D. Smith, Springer
Ser. Chem. Phys. 6 (Springer, Berlin-Heidelberg-
New York, 1979)
- /100/ D.S. King: Adv. Chem.Phys. 50 (1982) 105
- /101/ L.A. Pakhomychewa u.a.: JETP Lett. 12 (1970) 43
- /102/ T.P. Belikova u.a.: Sov.Phys. JETP 35 (1972) 1076
- /103/ N.C. Peterson u.a.: J.Opt.Soc.Am. 61 (1971) 746

- /104/ R.J. Thrash, H. Weyssenhoff, J.S. Shirk:
J.Chem.Phys. 55 (1971) 4659
- /105/ T.W. Hänsh, A.L. Schawlow, P.E. Toschek:
IEEE J.Quant.El. 8 (1972) 802
- /106/ R.A. Keller, E.F. Zalewski, N.C. Peterson:
J.Opt.Soc.Am. 62 (1972) 319
- /107/ B.H. Soffer, B.B. McFarland: Appl.Phys.Lett.
10 (1967) 266
- /108/ H. Furumoto, H. Ceccon: Appl.Phys.Lett. 13
(1968) 335
- /109/ V.S. Burakov: J.Appl.Spectr. 35 (1981) 843
- /110/ W. Brunner, H. Paul: Ann.der Physik, 7. Folge,
Band 32, Heft 5 (1975) 366
- /111/ H. Atmanspacher, H. Scheingraber, C.R. Vidal:
Submitted to Phys.Rev. A
- /112/ W. Brunner, H. Paul: Opt. Q. Electr. 10 (1978) 139
- /113/ B.I. Stepanov, A.N. Rubinov, M.V. Belokon:
J.Appl.Spectr. 24 (1976) 293
- /114/ S.J. Harris: J.Chem.Phys. 71 (1979) 4001
- /115/ S.J. Harris, A.M. Weiner: J.Chem.Phys. 74
(1981) 3673
- /116/ V.M. Baev u.a.: Sov.Phys. JETP 47 (1978) 21
- /117/ L.R. Lewellen, G.O. Brink: Opt.Comm. 39
(1981) 159
- /118/ T.W. Hänsh in: Topics in Appl.Phys., V.1 -
Dye Lasers, Ed. F.P. Schäfer (Springer, Berlin-
Heidelberg-New York, 1973)
- /119/ T.P. Belikova u.a.: Sov.J.Q.El. 5 (1975) 722
- /120/ V.M. Baev, H. Schröder, P.E. Toschek:
Opt. Comm. 36 (1981) 57
- /121/ S. Raab u.a.: Opt. Comm. 32 (1980) 133
- /122/ R. Fantoni u.a.: ENEA-Frascati Internal Report
15/LSM/82 (1982)
- /123/ S. Urban u.a.: J.Mol.Spectr. 79 (1980) 455

- /124/ P. Varanasi: J.Quant.Spectr.Rad.Tr. 12 (1972) 1283
- /125/ J.L. Lyman, L.J. Radziemski,Jr., A.C. Nilsson:
IEEE J.Q.Electr. 16 (1980) 1174
- /126/ A.S. Biryukov u.a.: Sov.J.Q.Electr. 6 (1977) 946
- /127/ A. Yariv: "Quantum Electronics", Wiley,
New York (1975)
- /128/ L.O. Hocker u.a.: Phys.Rev.Lett. 17 (1966) 233.

Danksagung

Zum Abschluß möchte ich allen danken, die zum Zustandekommen dieser Arbeit beigetragen haben, insbesondere:

- Herrn Professor K. Kompa für die Förderung dieser Arbeit und die Möglichkeit, sie in der Laserchemie-Abteilung des Max-Planck-Instituts für Quantenoptik auszuführen;
- Herrn Dr. W. Fuß für die Zusammenarbeit und besonders für sein konstantes Interesse an allen Diskussionen, die diese Arbeit sehr beeinflußt haben. Ich danke ihm auch für das Durchlesen des Manuskripts;
- Herrn Dr. Wan Chong-yi (Beijing) für die Zusammenarbeit während seines Gastaufenthaltes beim MPQ;
- Herrn Dr. A. Alimpiev (Moskau) für die Beteiligung an den Experimenten über Vielphotonenanregung in SF_6 ;
- Herrn Dr. W.E. Schmid für sein Interesse und seine Hilfe bei verschiedenen Gelegenheiten, sowie für das Durchlesen des Manuskripts über die selbständige Entladung und das Computerprogramm zum Steuern des Spektrometergitters;
- den Herren J. Hartmann und F. Aigner sowie der Werkstatt des MPQ für die technische Unterstützung;
- Frau E. Kraus für das sorgfältige Schreiben dieses Berichtes und Frau J. Pfister für das Anfertigen der Zeichnungen;
- Dr. Reginaldo dos Santos (CTA, Brasilien) für seine Ermutigung und Unterstützung während der Durchführung dieser Arbeit.

Ich danke noch für die finanzielle Unterstützung von CTA/CNEN - Brasilien.

Lebenslauf

Name: Carlos Schwab
Geburtsdatum: 14.09.1948
Geburtsort: Porto Alegre (Brasilien)
Eltern: Fritz Schwab
Maria Pathdorf-Schwab

Ausbildung:

- Bakkalaureus in Physik, Bundesuniversität
Rio Grande do Sul, Brasilien, 1975
- Master der Physik, Bundesstaatliche Universität
Campinas, Brasilien, 1978
- Promotionsstudium am Technologischen Institut
für Luftfahrt, Brasilien, 1979-1980
- Promotionsstudium an der Ludwig-Maximilians-
Universität München bzw. am Max-Planck-Institut
für Quantenoptik, Garching, 1982-1985.

